



Dispositifs optiques passifs et actifs à base de matériaux anisotropes

Samir Abbas

► To cite this version:

Samir Abbas. Dispositifs optiques passifs et actifs à base de matériaux anisotropes. Optique / photonique. Télécom Bretagne; Université de Bretagne Occidentale, 2015. Français. <tel-01280248>

HAL Id: tel-01280248

<https://hal.archives-ouvertes.fr/tel-01280248>

Submitted on 29 Feb 2016

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



THÈSE / Télécom Bretagne

sous le sceau de l'Université européenne de Bretagne

pour obtenir le grade de Docteur de Télécom Bretagne

En accréditation conjointe avec l'Ecole Doctorale Sicma

Mention : Sciences et Technologies de l'Information et de la Communication

présentée par

Samir Abbas

préparée dans le département Optique

Dispositifs optiques passifs et actifs à base de matériaux anisotropes

Thèse soutenue le 06 novembre 2015

Devant le jury composé de :

Jean-François Feller
Professeur, Université de Bretagne-Sud / président

Jean-François Blach
Maître de conférences (HDR), Faculté Jean Perrin / rapporteur

Joël Charrier
Maître de conférences (HDR), Lab. Foton - Université de Rennes 1 / rapporteur

Ivan Dozov
Chercheur, LPS - Université d'Orsay / examinateur

Jean-Louis De Bougrenet de la Tocnaye
Professeur, Télécom Bretagne / examinateur

Laurent Dupont
Professeur, Télécom Bretagne / directeur de thèse

Isabelle Hardy
Ingénieur d'études, Télécom Bretagne / invitée

Sous le sceau de l'Université européenne de Bretagne

Télécom Bretagne

En accréditation conjointe avec l'Ecole Doctorale Sicma

Dispositifs optiques passifs et actifs à base de matériaux anisotropes

Thèse de Doctorat

Mention : Sciences et Technologies Information Communication

Présentée par **Samir Abbas**

Département : Optique

Directeur de thèse : Laurent Dupont

Soutenue le 06 novembre 2015

Jury :

M. Jean-François Blach, Maître de conférences HDR, Faculté Jean Perrin (Rapporteur)

M. Joël Charrier, Maître de conférences HDR, Université Rennes1, Lannion (Rapporteur)

M. Laurent Dupont, Professeur, Télécom Bretagne (Directeur de thèse)

M. Jean-Louis de Bougrenet de la Tocnaye, Professeur, Telecom Bretagne (Examineur)

M. Jean-François Feller, Professeur, Université de Bretagne Sud (Examineur)

M. Ivan Dozov, Chercheur, université de Paris-Sud (Examineur)

Mme. Isabelle Hardy, Ingénieur d'études, Télécom Bretagne/CCLO (Invité)

Sous le sceau de l'Université européenne de Bretagne

Télécom Bretagne

En accréditation conjointe avec l'Ecole Doctorale Sicma

Dispositifs optiques passifs et actifs à base de matériaux anisotropes

Thèse de Doctorat

Mention : Sciences et Technologies Information Communication

Présentée par **Samir Abbas**

Département : Optique

Directeur de thèse : Laurent Dupont

Soutenue le 06 novembre 2015

Jury :

M. Jean-François Blach, Maître de conférences HDR, Faculté Jean Perrin (Rapporteur)

M Joël Charrier, Maître de conférences HDR, Université Rennes1, Lannion (Rapporteur)

M. Laurent Dupont, Professeur, Télécom Bretagne (Directeur de thèse)

M. Jean-Louis de Bougrenet de la Tocnaye, Professeur, Telecom Bretagne (Examineur)

M. Jean-François Feller, Professeur, Université de Bretagne Sud (Examineur)

M. Ivan Dozov, Chercheur, université de Paris-Sud (Examineur)

Mme. Isabelle Hardy, Ingénieur d'études, Télécom Bretagne/CCLO (Invité)

A ma mère

A ma famille

Je sais pourquoi tant de gens aiment couper du bois. C'est
une activité où l'on voit tout de suite le résultat.

Albert Einstein (1879-1955)

Expliquer toute la nature est une tâche trop ardue pour un
seul homme ou une seule époque. Il est plus sage de faire
peu en étant sûr de soi et laisser le reste à ceux qui
viendront après, que présumer de tout sans être sûr de
rien.

Isaac Newton

Philosophiæ Naturalis Principia Mathematica, 1687

Remerciements

Comme c'est coutume, on ne peut finaliser le manuscrit d'une thèse sans remercier tous ceux qui ont contribué de loin ou de près à l'aboutissement de ce travail de longue haleine.

Je tiens tout d'abord à remercier le professeur Jean-Louis de Bougrenet de la Tocnaye de m'avoir accepté et accueilli au sein du département d'optique de Telecom Bretagne et d'avoir accepté d'être membre de jury. J'exprime ma profonde reconnaissance et gratitude à mon directeur de thèse le professeur Laurent Dupont, je le remercie pour sa disponibilité et son implication quotidienne dans mes travaux de recherche, pour les différentes discussions assez variés, mais aussi pour son amitié et son aide. Je remercie les rapporteurs Jean-François Blach et Joël Charrier d'avoir accepté d'examiner mes travaux de recherche illustrés par le présent manuscrit, ainsi que leur différentes critiques et recommandations pour améliorer et mieux valoriser ce dernier. Je tiens aussi à remercier Ivan Dozov pour son aide et pour les différentes discussions sur les phénomènes physiques intervenants dans le projet NASTAROD, ainsi que Isabelle Hardy, Michel Gadonna et Olivier Castany pour leur aide et leur disponibilité dans le cadre du projet Select-Access. Sans oublier de remercier le professeur Jean-François Feller pour avoir accepté de présider ma soutenance.

Je remercie tous le personnel de Telecom Bretagne avec qui j'ai la chance d'interagir et plus spécialement mon ami Bernard Della (Berni le magnifique), pour le support technique indispensable pour la partie expérimentale ainsi que Emmanuel Daniel pour ses discussions interminables mais très enrichissantes ainsi que pour les différents conseils concernant l'aspect électronique. Un grand merci à Jennifer Romer, secrétaire du département d'Optique et qui gère quotidiennement l'aspect administratif avec le sourire. Sans oublier tous le personnel du RAK et spécialement Sonia.

Je remercie tous mes amis et collègues du département d'Optique, Stephen, Kedar, Suman, Di, Yoran, Daniel, Nicole, Frédéric, Kevin, Bruno Fracasso, Michel et sa bonne humeur, Samir, Michael de E3S, Barbara, Lida, Yulia et Raabia. Sans oublier mes amis dans d'autres départements et services : Ikbale, Mohammed, Zalamie, Julie, Chantal ainsi que son mari Michel, Agathe, Zikou, et Noemie sans oublier Kamel. Ah j'ai failli oublier notre cher ami Nicolas d'EVOSENS pour ta sympathie et ta souplesse d'esprit.

The Last but not the Least

UN spécial Remerciement à Gilles Martel, pour son amitié, son aide, ses encouragements et ses recommandations, repose en paix mon très cher ami.

Je tiens à remercier particulièrement toute ma famille éparpillée dans le monde entier, qu'ils soient vivants ou morts, pour leur aide, encouragements et leur amour inconditionnel, sans eux je ne serais pas ce que je suis aujourd'hui et je n'aurais pas accompli ce que j'ai fait jusqu'à présent.....je vous dis UN GRAND MERCI pour tout.

Enfin je tiens à remercier spécialement Khalil Chikha qui n'est pas qu'un simple collègue et sa femme Marina, dont leur amitié me tiens particulièrement à cœur. Une amitié qui s'est construite grâce à leur soutien, leur aide, et les différentes discussions enrichissantes qui ont changé ma vision de la vie, ainsi pour les différentes soirées passées tous ensemble....des souvenirs qui seront gravé à jamais dans ma mémoire. Merci à vous deux.

Table des matières

Résumé.....	v
Introduction générale.....	1
I. Filtres optiques accordables-état de l'art.....	3
I.1. Introduction	4
I.2. Filtres interférentiels de type Fabry-Pérot	4
I.3. Technologies d'accordabilité.....	6
I.3.1. Accordabilité par indice.....	6
I.3.1. a. Effet électro-optique.....	7
I.3.1. b. Effet thermo-optique.....	8
I.3.2. Accordabilité par la géométrie de la cavité.....	10
I.3.2. a. Effet électrostatique.....	10
I.3.2. b. effet piézoélectrique	11
I.4. Domaines d'application.....	11
I.4.1. Télécommunications	11
I.4.2. Interrogateur de capteurs à réseaux de Bragg.....	14
I.4.3. Tomographie à cohérence optique	17
I.5. Conclusion.....	20
Références.....	21
II. Théorie, Technologies et Caractérisation des coupleurs séparateurs de polarisation optique.....	23
II.1. Introduction.....	24
II.2. Théorie des coupleurs directionnels.....	25
II.3. Micro-résonateurs en anneaux.....	27
II.3.1. Généralités sur les micro-résonateurs en anneaux	27
II.3.2. Principe de fonctionnement d'un micro-résonateur en anneau.....	28
II.3.3. Dépendance du filtre à la polarisation.....	31
II.4. Coupleurs séparateurs de polarisation optique.....	33
II.5. Généralités sur les cristaux liquides.....	34
II.5.1. Introduction sur les cristaux liquides.....	34
II.5.1. a. Cristaux liquides nématiques.....	34
II.5.1. b. Cristaux liquides choléstériques.....	35
II.5.2. Propriétés anisotropiques.....	36
II.5.2. a. Anisotropie optique.....	36
II.5.2. b. Anisotropie diélectrique.....	36
II.5.3. Propriétés élastiques.....	37
II.5.4. Commutation des cristaux liquides.....	38
II.5.4. a. Couplage diélectrique.....	38
II.5.4. b. Mécanisme de commutation des CLs nématiques.....	38
II.6. Fabrication et caractérisation des coupleurs séparateurs de polarisation.....	40
II.6.1. Préparation et caractérisation des matériaux utilisés.....	41
II.6.1. a. Cristaux liquides polymérisables.....	41
II.6.1. b. Polymère de gaine.....	43

II.6.1. c. Couche d'alignement.....	44
II.6.2. Fabrication des coupleurs séparateurs de polarisation.....	44
II.6.3. Caractérisation optique.....	49
II.7. Conclusion.....	51
Références.....	52
III. Suspensions de nanoparticules de Goethite.....	54
III.1.Introduction	55
III.2. Structure cristallographique des nanoparticules d'argile.....	55
III.2.1. Nanoparticules de Goethite.....	55
III.2.2.Nanoparticule de Beidellite.....	57
III.3. Stabilité colloïdale des suspensions de goethite.....	57
III.4. Propriétés électro-optiques de la goethite.....	59
Mécanisme physique de la réorientation des particules sous le champ.....	62
1) Mécanisme électrostatique.....	62
2) Mécanisme de Maxwell-Wagner.....	64
3) Mécanisme de Maxwell-Wagner –O’Konski.....	65
III.5. Propriétés électriques de la goethite.....	67
III.5.1. Modèle électrique	67
III.5.2. Effets électrocinétiques.....	71
III.5.2.a. Electrophorèse.....	71
III.5.2.b. Diélectrophorèse.....	73
III.7. Conclusion.....	74
Références	75
IV. Filtre optique accordable à base de suspensions de goethite.....	77
IV.1.Introduction	78
IV.2.Choix du solvant	78
IV.2.1. Transparence optique.....	78
IV.2.2. Propriétés thermodynamiques et électriques.....	79
IV.2.3. Dépendance en fréquence.....	81
IV.3.Propriétés électrooptiques.....	84
IV.3.1.Mesures de biréfringence.....	84
IV.3.2. Mesures dichroïque.....	87
IV.3.3. Paramètre d'ordre.....	89
IV.4.Effets électrocinétiques.....	90
IV.5.Filtre optique Fabry-Pérot accordable.....	91
IV.5.1. Fabrication du filtre optique.....	91
IV.5.2. Résultats et discussions.....	93
IV.6. Conclusion.....	100
Références.....	101
Conclusion générale et perspectives.....	102
Annexe : principe d'interférence d'ondes multiples.....	104

Résumé

Le multiplexage par longueur d'onde ou WDM (Wavelength division multiplexing) est devenu une technologie incontournable dans les réseaux cœur et métro afin de répondre à l'augmentation du débit, au nombre de clients et la diversité des services offerts. Cette technologie nécessite des sources accordables mais aussi des filtres sélectifs et reconfigurables pour la gestion des différents canaux avec une basse consommation énergétique, une rapidité de quelques dizaines de millisecondes et un coût le plus bas possible. Mes travaux de thèse s'inscrivent dans cette optique, à savoir l'amélioration des filtres existants par la conception et la fabrication d'un coupleur séparateur de polarisation à base de cristaux liquides polymérisables. Cela permettra de s'affranchir de la dépendance à la polarisation dont souffrent les micro – résonateurs en anneaux. Mais également, l'étude des propriétés électro-optiques des suspensions de nanoparticules de goéthite sont présentées afin de concevoir et de fabriquer un filtre optique accordable de type Fabry-Pérot.

Mots clés : Guides optiques, Cristaux liquides, filtres optique, Fabry-Perot, suspensions colloïdales

Abstract

The Wavelength division multiplexing (WDM) is a key technology in core and metro networks to answer to the increased of bandwidth, to the number of customers and to the variety of services offered. This technology require tunable sources but also selective and reconfigurable filters for the managing of different channels with a low energy consumption, switching times around tens of milliseconds and the lowest possible cost. My thesis work is in this context, namely the improvement of existing filters by designing and manufacturing a coupler polarization splitter based on polymerizable liquid crystal technology. This will free itself from dependence on the polarization afflicting micro-resonators rings. But also, the study of electro-optical properties of goethite's nanoparticles suspensions is presented to design and manufacture a Fabry-Perot tunable optical filter.

Keywords: Optical waveguides, liquid crystals, optical filters, Fabry-Perot, colloidal suspensions

Introduction Générale

Les filtres optiques interférentiels trouvent leurs applications dans différents domaines allant des télécommunications aux applications aéronautiques en passant par le médical et les capteurs. L'augmentation de nombre de clients dans le domaine des télécommunications et la diversité des services offerts, pousse à utiliser de nouvelles stratégies tant que sur le point des protocoles de communications que sur le point technologique. Afin de satisfaire cette demande, toujours croissante, il est nécessaire de passer vers le multiplexage par longueur d'onde (WDM : Wavelength division multiplexing) qui se traduit par l'utilisation des longueurs d'onde comme canaux de communication afin d'accroître la bande passante des transmissions optiques. Cette technique nécessite des sources accordables mais aussi des filtres sélectifs pour la gestion des différents canaux avec une basse consommation énergétique, rapide (quelques dizaines de millisecondes) et à un coût le plus bas possible. Pour cela le filtre interférentiel Fabry-Pérot constitue un excellent candidat de par sa grande sélectivité spectrale et de par la diversité des domaines d'applications (instrumentation, spectroscopie et les LASERS).

La première partie du manuscrit présente les principes généraux concernant les filtres optiques Fabry-Pérot. Le fonctionnement des interféromètres à ondes multiples y est décrit ainsi que les différentes technologies d'accordabilité à savoir l'accordabilité par la variation de l'indice de réfraction (effets électro-optique et thermo-optique) et aussi l'accordabilité par la géométrie de la cavité (effets électrostatique et piézoélectrique). Dans le prolongement de ce descriptif technologique, on présentera certains domaines d'applications comme les télécommunications, les interrogateurs de capteurs à réseaux de Bragg et la tomographie à cohérence optique.

Le second chapitre est consacré aux travaux réalisés dans le cadre du projet ANR «Select-Acces », qui a pour objectif de concevoir et de fabriquer un coupleur séparateur de polarisation, en se basant sur la technologie cristaux liquides, afin de s'affranchir de la dépendance à la polarisation des micro-résonateurs en anneaux. Ce chapitre se divise en deux parties ; la première, théorique, reprend les principes du couplage entre guides optiques ainsi que l'état de l'art sur les coupleurs directionnels, les micro-résonateurs en anneaux et leur dépendance vis-à-vis de la polarisation mais aussi des généralités sur les cristaux liquides. La seconde partie de ce chapitre sera dédiée à la conception, la fabrication et la caractérisation des coupleurs séparateurs de polarisation basée sur les propriétés anisotropiques des cristaux liquides polymérisable Liquid Crystal Polymer (LCP)).

La dernière partie de ce manuscrit est dédiée au projet ANR «NASTAROD » (Nanoparticles in Aqueous Suspensions for TunAble and Reconfigurable Optical Devices). Comme son nom l'indique, il traite de la possibilité d'utiliser des suspensions de nanoparticules pour la conception et la fabrication de composants optiques accordables et reconfigurables. Cette partie sera divisée en deux chapitres. Le premier traitera du matériau utilisé à savoir les suspensions de nanoparticules de goethite de par la structure cristallographique des nanoparticules de goethite et leur stabilité colloïdale. Mais aussi leurs propriétés électro-optiques, les mécanismes de réorientation et certains phénomènes électrocinétiques pouvant apparaître sous l'effet d'un champ électrique.

Le dernier chapitre, quant à lui, sera dédié aux différents résultats expérimentaux réalisés durant ce travail de thèse. Il comportera les mesures des propriétés électro-optiques comme la biréfringence, le dichroïsme et le paramètre d'ordre dans différentes configurations de cellules (capillaires et plates) avec différents solvants tel que l'eau, l'eau lourde, éthylène glycol et le Diméthyl-sulfoxyde. Les divers résultats expérimentaux concernant les filtres optiques accordables de type Fabry-Pérot seront aussi présentés.

On finira le manuscrit par quelques conclusions concernant les travaux menés durant cette thèse et aussi certaines perspectives dans le but d'améliorer les résultats obtenus jusqu'ici du point de vue du matériau et du dispositif.

Chapitre 1 : Filtres Optiques Accordables Etat de l'art

I.1.Introduction

Un filtre optique est un dispositif qui permet de laisser passer ou d'extraire une partie du spectre lumineux incident. Cette fonction peut être réalisée par un mécanisme d'absorption sélectif de longueurs d'onde ; auquel cas, une partie du spectre sera absorbé ce qui permettra d'extraire la gamme spectrale sélectionnée. L'autre possibilité consiste à utiliser des interféromètres à ondes multiples qui permettent l'extraction d'une partie du spectre avec une grande sélectivité spectrale. Outre leur grande sélectivité spectrale, les filtres interférentiels ne font pas disparaître de bandes spectrales, ce qui présente un immense intérêt comme dans les télécoms où toutes les bandes spectrales qui circulent dans la fibre portent de l'information. Dans ce chapitre nous allons nous intéresser aux filtres optiques interférentiels accordables, en premier lieu nous allons définir les filtres optiques interférentiels, suivi par les diverses technologies d'accordabilité et enfin leurs domaines d'applications.

I.2. Filtres interférentiels de type Fabry-Pérot

Le filtre Fabry-Pérot est un interféromètre à ondes multiple qui permet d'obtenir de très grande sélectivité spectrale. Il est aussi bien utilisé en instrumentation, en spectroscopie et dans les LASER. Il est constitué de deux miroirs en vis-à-vis séparés par une distance d , avec un milieu intra-cavité d'indice n . La réflectivité des miroirs est égale à R . L'absorption est égale à A . L'absorption, la réflexion et la transmission des miroirs vérifient la relation : $R + T + A = 1$. En incidence normale, le déphasage de l'onde sur un aller et retour est : $\phi = \frac{2\pi}{\lambda_0} (2ne)$.

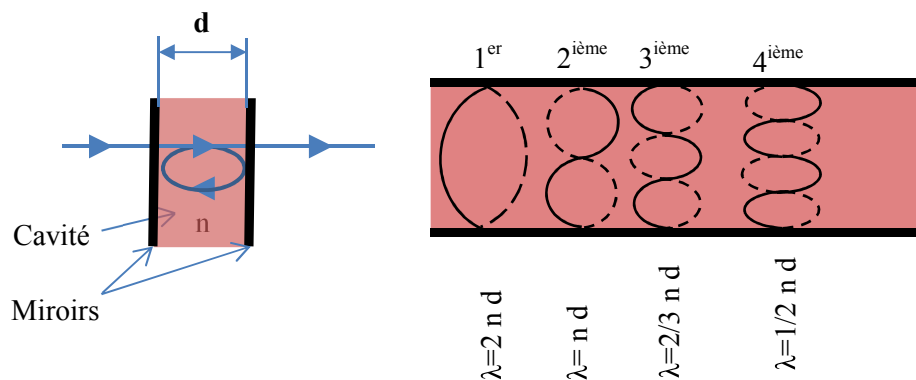


Figure 1. Représentation schématique d'un filtre Fabry –Pérot et des longueurs d'onde permises.

En sortie de la cavité, la somme des ondes transmises donne la puissance transmise suivante :

$$I_t(P) = I_0 \frac{T^2}{(1-R)^2} \frac{1}{1+M \sin^2(\phi/2)} \quad (I.1)$$

Avec $M = \frac{4R}{(1-R)^2}$

Dans le cas où $\phi = m2\pi$ avec m entier, l'intensité transmise au point P sera égale à :

$$I_{max} = I_0 \left(\frac{T}{1-R} \right)^2 \quad (I.2)$$

Dans le cas où $A = 0$, $I_{max} = I_0$; cependant si $A \neq 0$ alors $I_{max} \leq I_0$. En remplaçant (I.2) dans (I.1), on obtient finalement :

$$I_t(P) = \frac{I_{max}}{1 + M \sin^2(\phi/2)} \quad (I.3)$$

La fonction :

$$A(\phi) = \frac{1}{1 + M \sin^2(\phi/2)} \quad (I.4)$$

La fonction décrite par la relation (I.4) est appelée *fonction d'Airy*, qui est une fonction paire et symétrique, qui se compose de pics successifs dont le profil est lorentzien [1] comme illustré par la figure suivante.

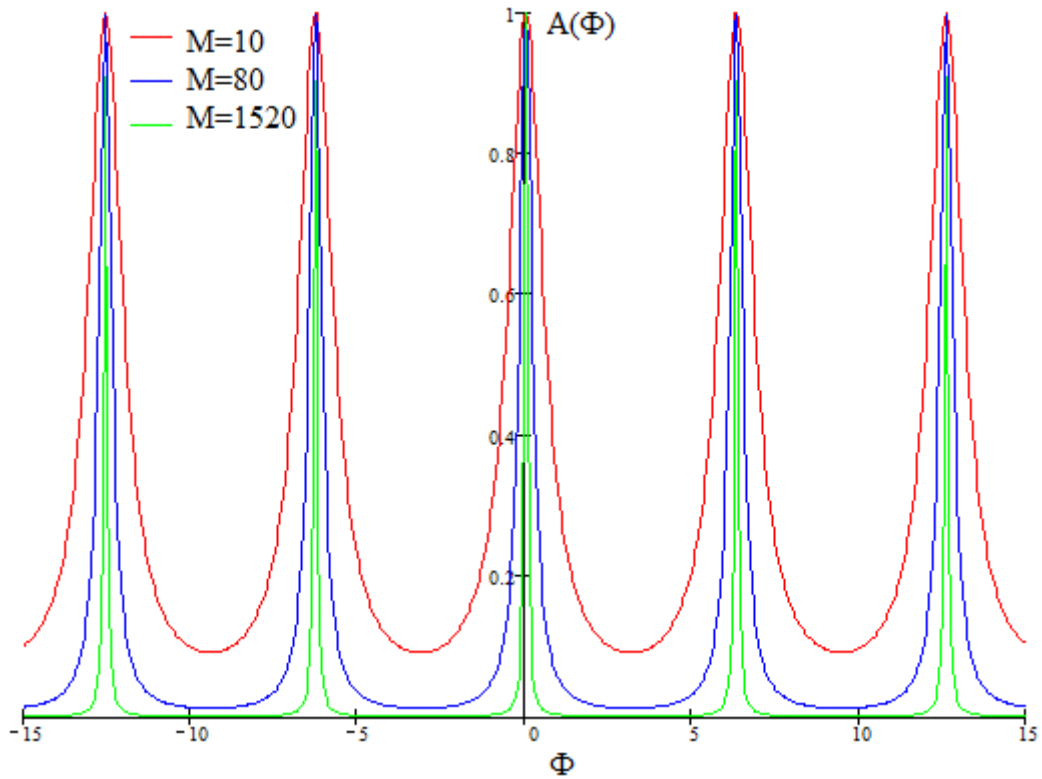


Figure 2. Simulation de la fonction d'Airy à partir de la relation (I.4) trois valeurs de M : 10, 80 et 1520.

La largeur à mi-hauteur des pics est donnée par : $\Delta\phi_{1/2} = \frac{2(1-R)}{R^{1/2}}$ (1.5)

Les ondes présentant un maximum de transmission doivent satisfaire la condition d'interférence constructive des ondes:

$$\phi = \frac{2\pi}{\lambda} 2ne = 2m\pi \quad (1.6)$$

Sachant que m est un entier. A partir de la relation ci-dessus on peut déterminer les différentes longueurs transmises en sortie du filtre :

$$\lambda_m = 2ne/m \quad (1.7)$$

Un autre paramètre très important est l'*intervalle spectral libre* « ISL », qui est l'intervalle séparant deux pics successifs qui est donné par la relation suivante :

$$ISL = \lambda^2/2ne \quad (1.8)$$

Afin de mieux séparer deux pics successifs, il serait intéressant qu'ils soient le plus fin que possible. Ceci peut se faire en réduisant la largeur à mi-hauteur $\Delta\lambda_{1/2}$ par rapport à l'ISL. Ce rapport est appelé *Finesse* notée F .

$$F = \frac{ISL}{\Delta\lambda_{1/2}} = \frac{\pi R^2}{1-R} \quad (1.9)$$

Autrement dit, un filtre de bonne qualité présente une finesse élevée.

I.3. Technologies d'accordabilité

Certains dispositifs ou systèmes optiques demandent un filtrage spectral accordable. A partir de la relation (1.7), on voit que la longueur d'onde filtrée est proportionnelle au trajet optique « ne ». Autrement dit, l'accordabilité peut se faire soit par le changement de l'indice de réfraction d'un matériau ou bien par le changement de la distance séparant les deux miroirs.

I.3.1. Accordabilité par l'indice

Afin d'effectuer un balayage spectral du filtre en changeant l'indice de réfraction à l'aide d'une commande électrique, il existe deux techniques, à savoir l'effet électro-optique et l'effet thermo-optique.

I.3.1.a. Effet électro-optique

Certains matériaux transparents changent leurs propriétés optiques lorsqu'ils sont soumis à un champ électrique. Ces interactions avec un champ électrique induisent une variation de l'indice de réfraction de ce matériau, c'est l'effet *électro-optique*.

La variation de l'indice de réfraction en fonction du champ électrique appliqué peut se manifester sous deux formes, la première est une variation d'indice proportionnelle au champ électrique; c'est un effet linéaire avec le champ électrique appelé *effet Pockels*. La seconde est une variation, quant à elle, est fonction quadratique du champ électrique, effet non-linéaire appelé *effet Kerr*.

La variation de l'indice de réfraction en fonction du champ électrique est donnée par la relation suivante [2] :

$$n(E) = n_0 - \frac{1}{2} t n^3 E - \frac{1}{2} s n^3 E^2 + \dots \quad (1.10)$$

Le premier terme de la relation (I.10) correspond à la valeur de l'indice de réfraction en absence du champ électrique, le second terme ($\frac{1}{2} t n^3 E$) correspond à l'effet Pockels où t est le coefficient Pockels. Et enfin le troisième terme ($\frac{1}{2} s n^3 E^2$) correspond à l'effet Kerr avec s le coefficient Kerr.

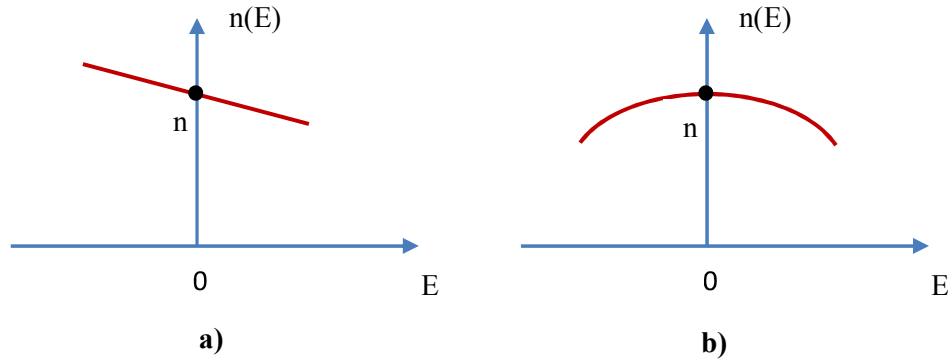


Figure 3. Variation de l'indice de réfraction en fonction du champ électrique appliqué : a) milieu Pockels, b) milieu Kerr.

Classiquement le troisième terme dans (I.10) est négligeable en comparaison au second terme, ce qui donne :

$$n(E) \approx n - \frac{1}{2} t n^3 E \quad (I.11)$$

Comme illustré dans la figure 3.a, le milieu est donc appelé milieu Pockels, avec des valeurs de t classiques variant entre 10^{-12} et 10^{-10} m/V ce qui implique des changements, de l'indice de réfraction, très faible de l'ordre de 10^{-6} à 10^{-4} (pour un champ de 10^6 V/m) [2].

Par contre, dans le cas des matériaux centro-symétriques comme les matériaux isotropes, c'est une dépendance quadratique de l'indice vis-à-vis du champ (Effet Kerr) qui est observée:

$$n(E) \approx n - \frac{1}{2} s n^3 E^2 \quad (I.12)$$

Dans ce cas le coefficient Kerr appelé aussi coefficient électro-optique quadratique est de l'ordre de 10^{-18} à 10^{-14} m²/V² dans les cristaux et 10^{-22} à 10^{-19} m²/V² dans les liquides. Ceci donne une variation de l'indice entre 10^{-6} à 10^{-2} dans le cas des cristaux et 10^{-10} à 10^{-7} dans le cas des liquides et ce pour un champ appliqué de 10^6 V/m [2]. A titre d'exemple, le temps de réponse pour le Zn-CTAB est d'environ 250fs [3].

Le temps de réponse de l'effet électro-optique varie en fonction du matériau utilisé, on distingue à titre d'exemple les PDLC (Polymer Dispersed Liquid Crystal) avec 5-10 ms [4], et les cristaux liquides nématiques avec 10 ms [5] et concernant le LiNbO₃ et LiTaO₃, le temps de réponse est inférieur à la picoseconde [6].

Les cristaux liquides nématiques ont une modulation d'indice à la saturation, qui correspond à la biréfringence, comprise entre 0.2 et 0.4 [7], Tandis que le LiNbO₃ est de l'ordre de -0.0884 [8].

I.3.1.b. Effet thermo-optique

Une autre méthode d'accordabilité en variant l'indice de réfraction est d'utiliser l'effet thermo-optique. En effet, cette technique largement utilisé dans l'optique intégrée comme dans les résonateurs en micro-anneaux (composant décrit dans le prochain chapitre).

Matériaux	Indice de réfraction (à 1550nm)	Coefficient thermo-optique $C_{to}=dn/dT$ [$10^{-4}K^{-1}$]	Coefficient de dilatation thermique γ [$10^{-6} K^{-1}$]	Conductivité thermique σ_{th} [WK ⁻¹ m ⁻¹]
Polymères	1.3 – 1.7	(-1) – (-4)	10 – 220	0.1 – 0.3
Silice	1.5	0.1	0.6	1.4
Silicium	3.5	1.8	2.5	168

Tableau 1. Propriétés thermo-optique de certains matériaux [9].

Comme on peut le constater dans le tableau 1, le coefficient thermo-optique C_{to} varie considérablement entre les matériaux. Afin de choisir un matériau pour des applications thermo-optiques, il faut prendre en considération la conductivité thermique. Comme on peut le constater, dans le même tableau, les polymères présentent un coefficient thermo-optique comparable à celui du

silicium mais présentent une conductivité thermique plus faible ce qui permet d'obtenir un taux de conversion meilleur que dans le cas du silicium. Autrement dit, la chaleur se dissipe moins vite dans les polymères en comparaison au silicium, impliquant un taux de conversion électrothermique meilleur dans le cas des polymères. La relation entre l'indice de réfraction et la température est donnée par la relation suivante :

$$n(T) = n(T_0) + C_{to} (T - T_0) \quad (I.13)$$

Avec $n(T_0)$ est l'indice de réfraction à la température de référence T_0 et C_{to} est donnée par [7] :

$$C_{to} = \frac{dn}{dT} = \frac{(n^2-1)(n^2+2)}{6n} \left(\frac{1}{\alpha} \frac{d\alpha}{dT} - 3\gamma \right) \quad (I.14)$$

Dans la relation (I.14), on suppose que la polarisabilité moyenne α est indépendante de la dilatation du matériau et que le coefficient de dilatation thermique γ ne varie pas avec la température. Comme on peut le voir dans la même relation, il existe deux mécanismes responsables de la variation de l'indice de réfraction en fonction de la température : le premier est dû à la variation de la polarisabilité avec la température et le second est la diminution de la densité avec la dilatation thermique. Pour les polymères, le terme 3γ est plus grand que $\left(\frac{1}{\alpha} \frac{d\alpha}{dT}\right)$, ce qui donne une variation négative de l'indice de réfraction en fonction de la température. A titre d'exemple, si un polymère possède un coefficient de dilatation thermique $\gamma = 9 \cdot 10^{-5} K^{-1}$ et un indice de réfraction de 1.5, alors le coefficient thermo-optique est de $C_{to} = -1.6 \cdot 10^{-4} K^{-1}$. Par contre, dans le cas de la silice, où 3γ est très faible devant $\left(\frac{1}{\alpha} \frac{d\alpha}{dT}\right)$, permet d'avoir un C_{to} positive ($1 \cdot 10^{-5} K^{-1}$) qui reste relativement faible comparé à celui des polymères [9]. Un autre paramètre important à tenir en compte est le temps de commutation qui est donné par la relation suivante [9] :

$$\tau = \frac{C_{th}\rho}{2\sigma_{th}} H^2 \quad (I.15)$$

Avec C_{th} est la capacité thermique (appelée aussi capacité calorifique), ρ densité volumique, σ_{th} la conductivité thermique et enfin H l'épaisseur du matériau à chauffer. En utilisant les mêmes paramètres géométriques et la même puissance thermique par unité de longueur, on estime le temps de réponse pour la silice à $\tau = 566\mu s$ et pour un type de polymère $\tau = 8.1ms$ [9] (les différents paramètres sont donnés dans le tableau 2).

Matériaux	Capacité Thermique $C_{th} [J g^{-1} K^{-1}]$	Densité volumique ρ [g cm ⁻³]	Conductivité thermique $\sigma_{th} [WK^{-1} m^{-1}]$
Silice	0.8	2.2	1.4
Polymère	1.5	1.2	0.1

Tableau 2. Propriétés des matériaux utilisées pour le calcul de temps de commutation thermo-optique [9].

I.3.2. Accordabilité par la géométrie de la cavité

Comme on l'a vu précédemment, on peut changer la longueur d'onde en variant la distance entre les deux miroirs qui peut se faire par la force électrostatique ou bien par l'effet piézoélectrique. Cette variation de l'épaisseur du filtre interférentiel, est donnée à partir de la relation (I.16) :

$$\Delta\lambda = \lambda \frac{\Delta e}{e} \quad (\text{I.16})$$

I.3.2.a. Effet électrostatique

Pour effectuer cette fonction, il faut exercer une force électrostatique entre les deux miroirs contenant des électrodes électriques. Ce qui permet d'attirer les deux miroirs l'un vers l'autre et ainsi réduire la distance entre eux. La figure 4 est une représentation schématique de ce genre de composant. Ce dernier fera l'objet d'une étude plus détaillée dans le cinquième chapitre. Le temps de réponse des Fabry Pérots électrostatiques peut être de l'ordre de 2 μs [10]. Les fréquences sont classiquement comprises entre 1KHz et 1 MHz selon les géométries, les dimensions et les technologies utilisées.

Le modèle simplifié du système peut être résumé par l'équation qui donne la somme des forces appliquées sur la membrane déformable de surface active A :

$$F_{tot} = \frac{1}{2} \frac{\varepsilon A_{el}}{(d-z)^2} U^2 - kz \quad (\text{I.17})$$

Le premier terme décrit la force électrostatique et le deuxième terme décrit la force de rappel élastique de la membrane et z le déplacement de cette même membrane.

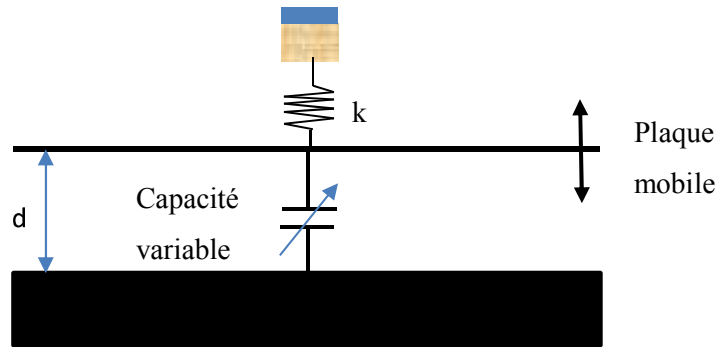


Figure 4. Représentation schématique d'un Fabry Péroto électrostatique modélisé par un condensateur plan variable.

I.3.2.b. Effet piézoélectrique

Un matériau piézoélectrique, à la propriété de produire une déformation mécanique sous l'effet d'une contrainte électrique et inversement. Cette particularité a permis de réaliser des actionneurs pour les filtres Fabry Péroth accordables en modifiant la distance entre les deux miroirs. Comme illustré dans la figure 5, les deux miroirs sont montés sur le matériau piézoélectrique. L'application d'une tension au bord du matériau piézoélectrique, permet de créer une déformation longitudinale et de ce fait varier l'épaisseur de la cavité. Le temps de réponse de ce genre de filtre est déterminé par les propriétés du matériau piézoélectrique qui est typiquement aux alentours de 0.5ms [11].

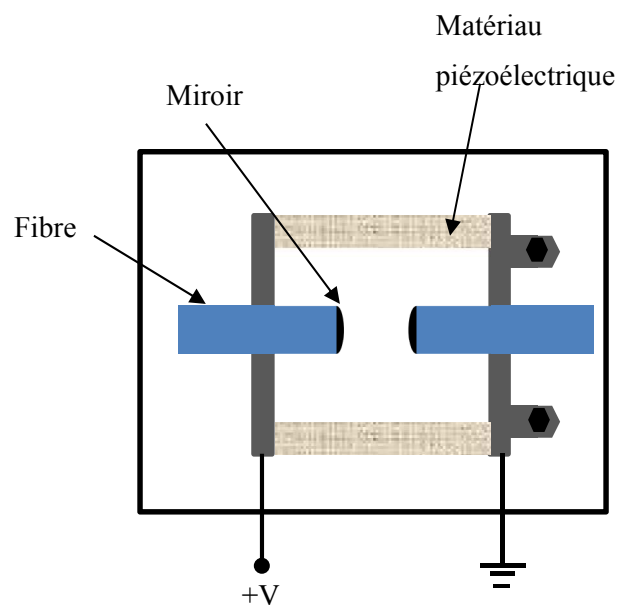


Figure 5. Représentation schématique d'un Fabry Péroth contrôlé par l'effet piézoélectrique

I.4. Domaines d'application

Les filtres optiques accordables sont utilisés dans divers domaines tels que les télécommunications, les interrogateurs de capteurs à réseau de Bragg, la tomographie à cohérence optique ...etc. Dans cette partie nous allons décrire ces domaines d'applications en donnant les différentes caractéristiques requises des filtres optiques pour chaque domaine.

I.4.1. Télécommunications

Depuis l'avènement de l'internet, on assiste à une augmentation du débit dans le réseau en raison de l'accroissement du volume des contenus (vidéos, télévision...etc.) mais aussi en raison de l'augmentation du nombre d'utilisateurs. Ce qui nous pousse à chercher de nouvelles méthodes que ça soit sur le plan technologique par le biais de la conception et de la fabrication de nouveaux

composants optiques plus performants, ou bien sur le plan de la gestion et les protocoles de transmission et de réception.

La méthode de transmission de données peut se décliner en plusieurs techniques, parmi elles la FDM (Frequency division multiplexing), la TDM (Time Division Multiplexing) ou le WDM (Wavelength Division multiplexing) ainsi que la DWDM (Dense WDM). Dans ce qui va suivre nous allons expliquer, de façon simpliste, le principe de la WDM citées ci-dessus.

Le multiplexage en longueur d'onde ou WDM (Wavelength Division Multiplexing) en anglais, utilise un multiplexage de longueur d'ondes optiques afin d'augmenter le débit total mais aussi pour une plus grande efficacité de gestion du réseau optique par exemple en attribuant une longueur d'onde à chaque utilisateur. Le principe de base est illustré par la figure 6.

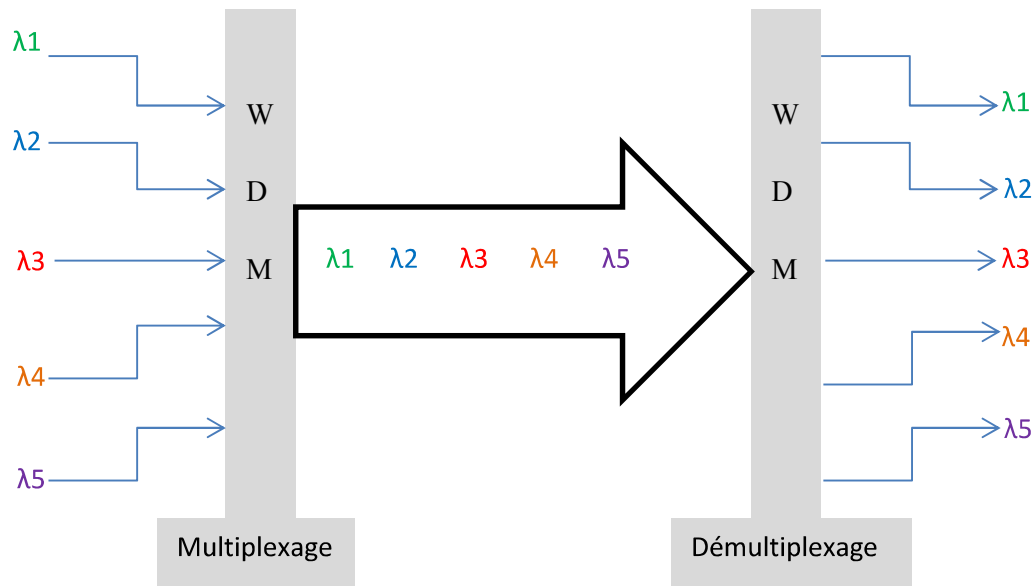


Figure 6. Représentation schématique du multiplexage en longueur d'onde.

Il existe plusieurs normes pour le WDM. Tout d'abord le spectre optique dans l'infrarouge est divisé en plusieurs sous-bandes :

- O-Band (Original band de 1260nm à 1360nm)
- E-Band (Extended band : 1360 à 1460nm)
- S-band (Short band : 1460 à 1530nm)
- C-Band (Conventional band : 1530nm à 1565nm)
- L-Band (Long band 1565 à 1625 nm)
- U-band (Ultra long band : 1625 à 1675nm)

Concernant l'espacement inter-canaux, on distingue essentiellement deux types le CWDM (Coarse Wavelength Division Multiplexing) qui ne nécessite pas un contrôle de température de la

source laser du fait que l'espacement entre deux canaux successifs est de 20 nm avec une variation de la longueur d'onde de la source de $\pm 6-7$ nm [12]. Et le DWDM (Dense Wavelength Division Multiplexing) dont la fréquence centrale est de 193.1THz (1552.52nm) avec un espacement de canaux pouvant varier entre 12.5 GHz (0.1nm), 25 GHz (0.2nm), 50 GHz (0.4nm) et 100 GHz (0.8nm) [13].

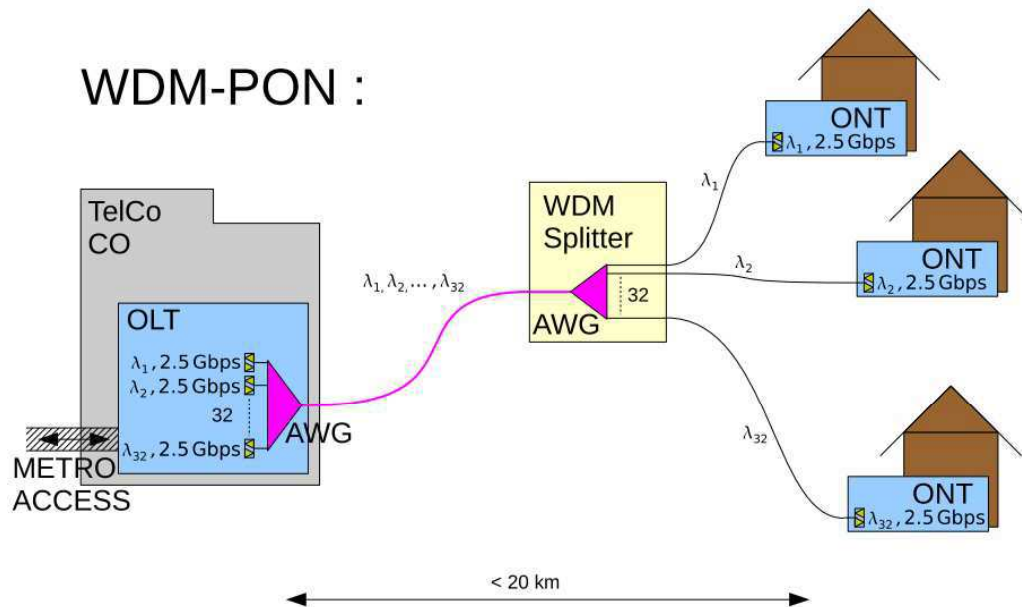


Figure7. Représentation schématique d'un réseau WDM-PON [14].

Prenons l'exemple d'un réseau de type PON (Passive Optical Network) qui est schématisé par la figure 7. La communication entre l'OLT (Optical Line Terminal) et l'ONT (Optical Network terminal) s'effectue en attribuant une longueur d'onde unique à ce dernier. Ceci implique l'utilisation de différentes sources laser calées sur les grilles WDM. Si le réseau utilise des multiplexeurs (MUX) et des démultiplexeurs (DEMUX) entre l'OLT et les ONT, chaque longueur d'onde sera affectée directement à un groupe d'abonnés (ONT). Il existe plusieurs technologies pour les MUX/DEMUX [15] :

- les AWG (Arrayed Waveguide Grating),
- les réseaux de diffraction

Dans le cas où le réseau utilise non pas des DEMUX, mais des coupleurs, il faut utiliser des filtres optiques au niveau des OLT. Ces filtres sont soit passifs soit actifs. Plusieurs concepts de filtres sont envisageables : Les filtres de Bragg, les filtres Fabry-Pérot, les cristaux photoniques et les micro-résonateurs en anneaux [15]. Dans le cadre d'une reconfigurabilité du réseau et également par soucis d'introduire un facteur d'échelle dans le coût des filtres, il est très intéressant que ces filtres soit accordables. Pour cela des effets électrooptiques, optomécanique, thermo-optiques peuvent être utilisés.

Le temps de commutation nécessaire dans le cas des réseaux DWDM est compris entre 10ms et une seconde [16].

I.4.2. Interrogateur de capteurs à réseaux de Bragg

Les capteurs à base de réseaux de Bragg (FBG : Fiber Bragg Grating) trouvent leurs applications dans différents domaines comme dans la métrologie pour la mesure de contraintes mécaniques ou de température. Ce type de capteur à réseau de Bragg utilise la propriété qu'ont ces réseaux d'avoir une grande sélectivité de la longueur d'onde réfléchie. Si bien qu'une faible modification du pas du réseau de Bragg, due à une variation de contrainte mécanique ou de température va engendrer un décalage de la longueur d'onde réfléchie qui pourra être mesuré. Les avantages de ce genre de capteurs sont multiples :

- Mesures de contraintes et de température déportées
- Mesures optiques compatibles avec des environnements à risque (explosif)
- Utilisation d'une technologie mature: la fibre optique et les filtres de Bragg photo-inscrits
- Insensibilité aux interférences électromagnétiques
- Possibilité de cascader plusieurs FBG sur une même fibre.

Lorsqu'on transmet une lumière à large spectre via un FBG. Ce dernier reflète une longueur d'onde spécifique appelée longueur d'onde de Bragg qui est donnée par la relation suivante :

$$\lambda_b = 2n\Lambda \quad (I.18)$$

Avec λ_b est la longueur de Bragg, n l'indice de réfraction effectif du cœur de la fibre et Λ le pas du réseau. Les figures 8 et 9 illustrent, respectivement, une représentation schématique d'un réseau de bragg sur fibre et le fonctionnement de ce genre de capteur.

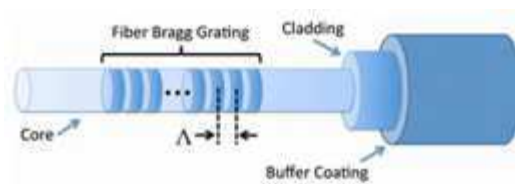


Figure 8. Représentation d'un réseau de Bragg sur fibre [17].

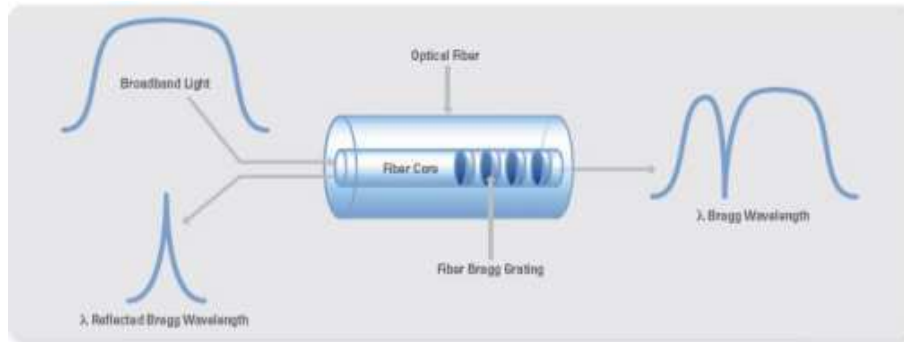


Figure 9. Fonctionnement d'un capteur optique FBG [17].

Une variation de contrainte sur le capteur (élongation) va modifier le pas du réseau et va venir décaler la longueur d'onde réfléchie par le capteur. La mesure du décalage de la longueur d'onde réfléchie permet une mesure de contraintes exercées.

Comme on l'a cité précédemment, on peut mettre plusieurs FBG en cascade sur la même fibre optique. Dans ce cas il est nécessaire d'avoir un interrogateur. Ce dernier se décline en plusieurs méthodes et tout dépend de la source utilisée. En effet, en utilisant une source lumineuse à large spectre, on peut utiliser un élément dispersif et un capteur CCD afin de récupérer les différents spectres des capteurs comme montré dans la figure 10.

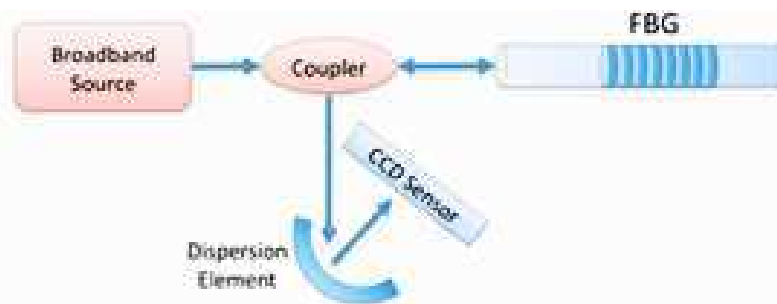


Figure 10. Méthode de conversion de position de longueur d'onde pour interrogation des FBG [17].

Cette méthode permet d'effectuer des mesures rapides et simultanées pour tous les FBG du réseau. Cependant, elle est limitée en termes de résolution. Il existe une autre méthode qui permet de résoudre ce problème, qui est l'utilisation des cavités Fabry Péro pour en faire des lasers accordables. Cette méthode peut garantir une précision de $\sim 1\text{pm}$ ce qui se traduit par des précisions (dans le cas de capteur de température) de $\sim 0.1^\circ\text{C}$ [17].

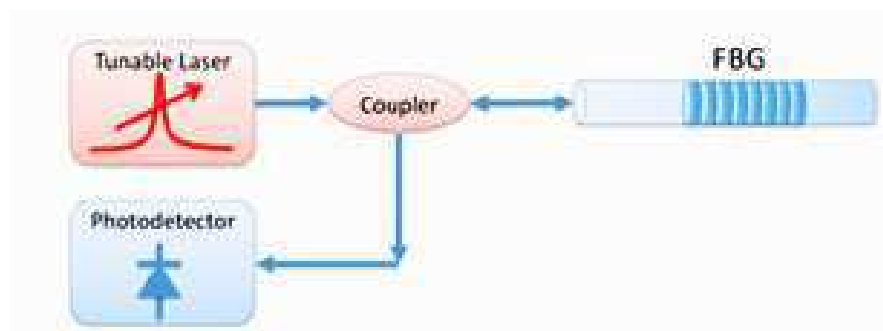


Figure 11. Approche par laser accordable pour l'interrogation de capteurs à fibre optique FBG [17].

La figure 12. Illustre les performances des différents systèmes pour interroger les capteurs FBG. D'après cette figure, on constate qu'il y a trois paramètres qui sont importants, et qui sont la résolution et l'accordabilité spectrale et aussi la fréquence de balayage. Le tableau 3 illustre les performances des différents systèmes de mesures à base de capteurs FBG. La plage spectrale va donner le nombre de capteurs qu'on pourra mettre en ligne. La résolution nous donne la précision de la mesure. La fréquence indique la vitesse d'échantillonnage (précision de la mesure) mais également donne des indications sur les fréquences maximum des effets à mesurer (vibrations par exemple)

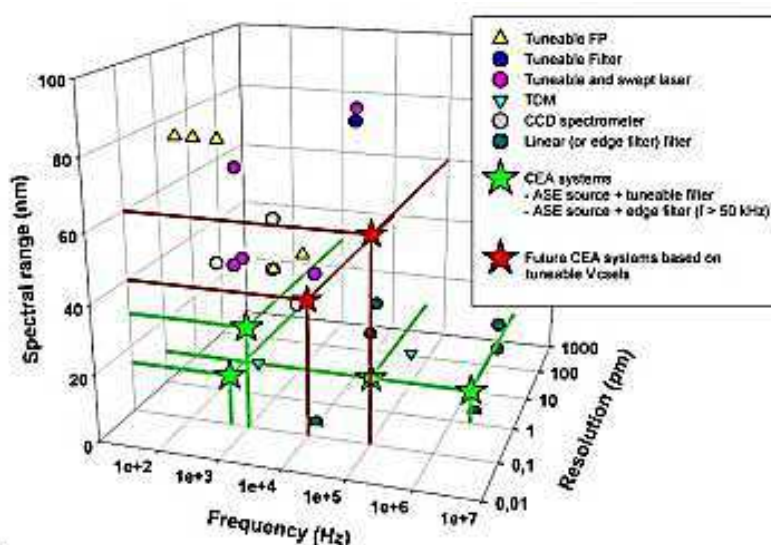


Figure 12. Performances actuelles pour l'interrogation des capteurs FBG [18].

Caractéristiques	Objectifs
Résolution	2 pm
Fréquence de Balayage	1kHz
Intervalle de longueur d'onde	100 nm
Tension de pilotage	10 V
Dimensions pour le filtre	5cm x 5cm x 2 cm
Pour le système	10 cm x 10cm x10cm
Consommation électrique	50 W

Tableau 3. Performances idéales des filtres accordables pour l'interrogation des FBG [18].

I.4.2. Tomographie à cohérence optique

La tomographie à cohérence optique ou OCT (Optical Coherence Tomography) compte parmi les développements les plus innovants, de ces dernières années, dans le domaine de l'imagerie médicale. Elle est utilisée principalement en ophtalmologie et en dermatologie. Son principe de fonctionnement est analogue à celui de l'imagerie échographique qui utilise la réflexion des ondes mais à la différence d'ondes ultrasonores, on utilise des ondes lumineuses. Le principe de fonctionnement de l'OCT est illustré par la figure 13. L'OCT fonctionne sur la base de la corrélation de l'onde réfléchi par un objet avec l'onde de référence. Cette fonction est réalisée grâce à un interféromètre de Michelson.

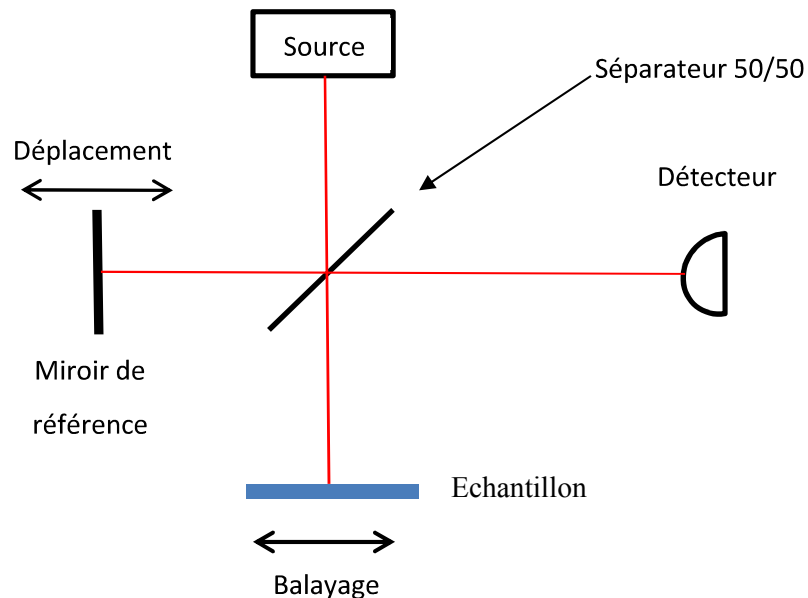


Figure 13. Principe de la tomographie à cohérence optique.

Afin de visualiser la structure de l'échantillon, on fait translater le miroir de référence en même temps que l'acquisition par le détecteur. Cette méthode est appelée tomographie à cohérence optique temporelle ou TD-OCT (Time Domain Optical Coherence Tomography) [19]. Il est aussi possible d'effectuer l'acquisition sans déplacer le miroir de référence, en utilisant l'espace conjugué de Fourier. Cette technique est appelée tomographie à cohérence optique fréquentielle ou FD-OCT (Frequency Domain Optical Coherence Tomography). Elle est basée sur le principe que l'information de la profondeur est codée en fréquence dans le spectre d'interférences [19], ce qui signifie que l'acquisition

de l'information ne se fait plus sur la base du temps mais en utilisant les fréquences ou les longueurs d'ondes permettant ainsi de garder le miroir de référence fixe, ce qui se traduit par la réduction du temps d'acquisition du profil en comparaison à la TD-OCT. Cette technique possède deux variantes qui sont illustrés par les figures 14 et 15.

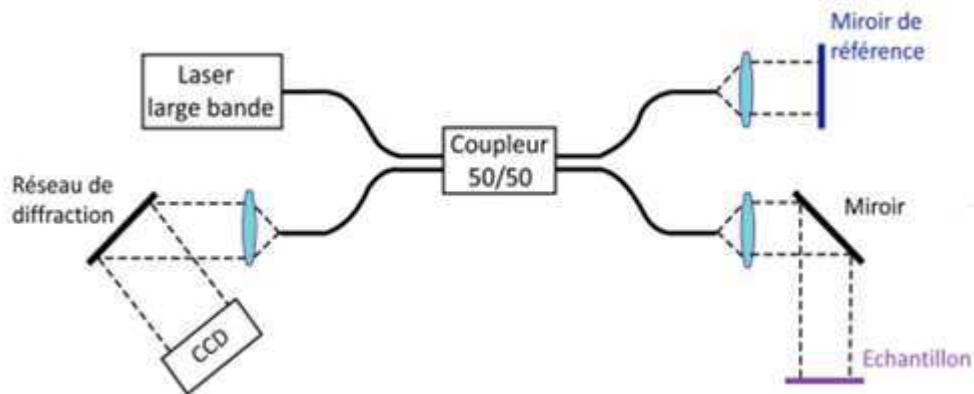


Figure 14. Principe de la FD-OCT avec une source à large bande et un spectromètre [19].

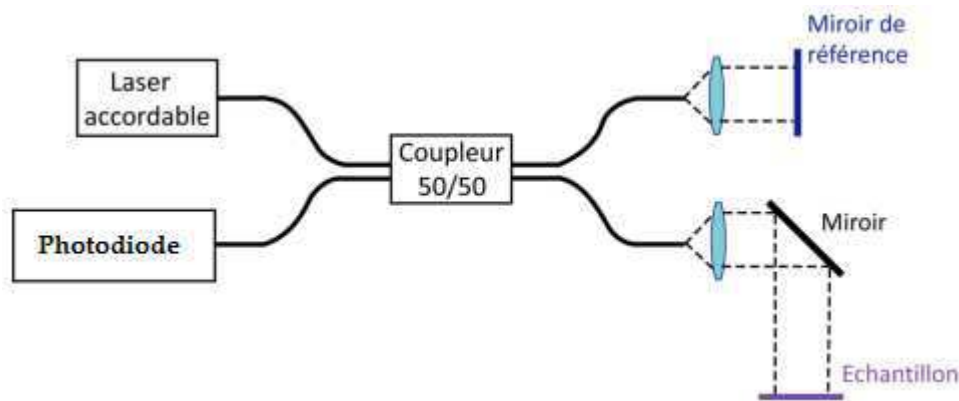


Figure 15. Principe de la FD-OCT avec une source accordable [19].

La variante de la FD-OCT, illustrée par la figure 14, est dite tomographie à cohérence optique dans le domaine spectral ou SD-OCT (Spectral Domain OCT). Elle utilise une source lumineuse à grande largeur spectrale et un réseau de diffraction et une camera CCD pour l'acquisition du signal d'interférences. La seconde variante, représentée par la figure 15, est appelée tomographie à cohérence optique à balayage spectral ou SS-OCT (Swept Source OCT). Cette dernière utilise une source laser accordable avec une faible largeur spectrale et un seul détecteur pour l'acquisition du signal d'interférences en balayant la longueur d'onde. La transformée de Fourier du signal obtenue par le détecteur permet d'obtenir le coefficient de réflexion en fonction de l'épaisseur. La Figure 16 donne un aperçu de l'avantage du domaine spectral sur le domaine temporel.

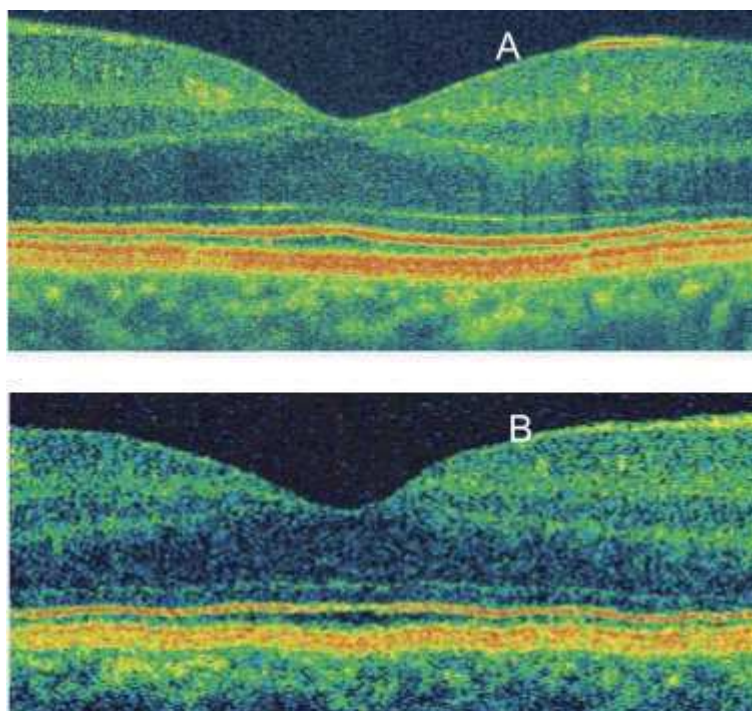


Figure 16. Images de rétine humaine en utilisant une: a) SD-OCT et b) TD-OCT [20].

La source laser accordable doit avoir plusieurs caractéristiques comme une vitesse de commutation supérieure à 100 kHz, un encombrement minimal, une faible intensité relative de bruit (IRB) et un faible coût. A titre d'exemple le tableau 4 illustre les différents paramètres visés d'une source laser accordable, pour OCT, par Santec Corporation.

Caractéristiques	Spécifications ciblées	
Longueur d'onde centrale	1300 nm	1060 nm
Puissance de sortie	20 mW	15 mW
La plage d'accordabilité	150 nm	120 nm
Vitesse de balayage	50 & 100 kHz	50 & 100 kHz
Longueur de cohérence	15 mm	15 mm
IRB	-120dB/Hz	-120 dB/Hz

Tableau 4. Performances visées par Santec Corporation [21].

I.5. Conclusion

Dans ce chapitre nous nous sommes intéressés aux généralités sur les filtres interférentiels optiques accordables, qui font l'objet de plusieurs travaux de recherche au sein notre laboratoire, en commençant par définir le principe de fonctionnement, et les différentes techniques d'accordabilité et aussi certains domaines d'applications avec les caractéristiques visées par chaque domaine.

Référence

- [1] : Optique Fondements et applications, Livre Dunod, J. P. Pérez, 2000.
- [2]: Fundamentals of Photonics, Livre Wiley, B. E. A. Saleh et M. C. Teich, 2007.
- [3]: Quadratic Electro-Optic Kerr Effect: Applications to photonic devices, M. Qasymeh, M. Cada et S. A. Ponomarenko, IEEE Journal of Quantum Electronics, Vol.44, N.8, Pages 740-746, 2008.
- [4]: Electrooptic Effects in liquid crystal materials, Livre Springer, M. L. Blinov et V. M. Chigrinov, 1996.
- [5]: Ultrafast switching of randomly-aligned nematic liquid crystals, D. H. Song, J-W. kim, J-H. kim, S. J. Rho, H. Lee, H. Kim, T-H. Yoon, Optical Express, Vol. 20, N. 11, pages 11659-11664, 2012.
- [6]: Guided –wave Optical wavelength manipulating devices using electrooptic effect, H. Murata et Y. Okamura, Photonics based on wavelength integration and manipulation, IPAP Books 2, Pages 213-224, 2005.
- [7]: www.Merck.com
- [8]: The temperature dependence of the refractive indices of pure Lithium Niobate, M. V. Hobden et J. Warner, Physics Letters, Vol.22, N. 3, Pages 243-244, 1966.
- [9]: Optical switching, Livre Springer, T. S. El-Wahab, 2006.
- [10]: Widely tunable Fabry-Perot filters using high-index contrast DBR's, P. P. Tayebaty, P. D. Wang, D. Vakhshoori, M. Azimi, M. Kanshar, R. N. Sacks, Proceeding SPIE 3234, Design and Manufacturing of WDM devices, 206, DOI. 10.1117/12.300929, 1998.
- [11]: Wavelength filters in fibre optics, D. H. Genzebroek et A. Driessen, Livre Springer Series in Optical Science, 2006.
- [12] : Grilles spectrales pour les applications de multiplexage par répartition en longueur d'onde : grille espacée CWDM, UIT (Union Internationale des Télécommunications), 2002.
- [13] : Grilles spectrales pour les applications de multiplexage par répartition en longueur d'onde : grille dense DWDM, UIT (Union Internationale des télécommunications), 2002.
- [14] : Microtechnologie optoélectronique incluant des matériaux mésomorphes, O. Castany, Thèse de doctorat, Telecom Bretagne, Brest, 2010.
- [15]: Principes fondamentaux des capteurs à fibre optique FBG, National Instruments, Jan. 2012.

- [16]: Transmission Impairment in DWDM Networks with reconfigurable optical add-drop multiplexers, S. Tibuleac et M. Filer, Journal of Lightwave technology, Vol. 28, N. 4, Pages 557-568, 2010.
- [17]: Introduction to DWDM Technology, S.V.Kartalopoulos, Wiley–IEEE Press, 2000.
- [18] : TUNable liquid crystal filtER for SENSors INterrogator, Projet ANR, 2010.
- [19] : Tomographie par cohérence optique plein champ linéaire et non linéaire, D. Sacchet, Thèse de doctorat, Université de Paris-Sud 11, Orsay, 2010.
- [20]: Spectral domain optical coherence tomography: a better OCT imaging strategy, Z. Yaqoob, J. Wu et C. Yang, Biotechniques Journal, Vol. 39, N. 6, Pages 6-13, 2005.
- [21]: Optical Coherence Tomography, Santec Corporation (www.Santec.com), Vol. 1.1, 2010.

Chapitre 2 :

Théorie, Technologie et Caractérisation des coupleurs séparateurs de polarisation optique

II.1. Introduction

Depuis l'avènement de l'internet, on recherche sans cesse à augmenter le volume ainsi que la vitesse des données transmises via le réseau en raison de la nature des besoins (vidéos, télévision...etc.) mais aussi en raison de l'augmentation du nombre d'utilisateurs, ce qui nous pousse à chercher de nouvelles méthodes que ça soit sur le plan technologique par le biais de la conception et la fabrication de nouveaux composants optiques plus performants, ou bien sur le plan de la gestion et les protocoles de transmission et de réception.

Comme on l'a mentionné dans le chapitre précédent, cette augmentation peut se faire par le biais du multiplexage en longueur d'onde qui nécessite de nouveaux composants permettant d'insérer et/ou d'extraire un signal optique. C'est dans ce but que les micro-résonateurs en anneaux ont bénéficié d'un intérêt particulier en recherche en raison de leurs faibles dimensions qui permettent de les inscrire dans le domaine de l'optique intégrée mais aussi leur fabrication en polymère, qui possèdent un coefficient thermo-optique élevé, leur confèrent une accordabilité plus élevée [1].

Ce genre de composant, comme on va le voir par la suite, présente un problème de taille qui est la dépendance à la polarisation. Ce phénomène est dû à la courbure de l'anneau. En effet, même si un guide possède une section parfaitement carrée les deux modes de polarisation (TE et TM) ne perçoivent pas le même indice de réfraction. Une des solutions est de fabriquer des guides de section rectangulaire de telle sorte que les indices effectifs soient égaux. Cependant cette solution impose un contrôle rigoureux sur les dimensions, chose difficile à contrôler. Une autre solution consiste à filtrer les deux polarisations séparément grâce à un coupleur séparateur de polarisation. Dans le cas du projet «Select Access», nous nous sommes intéressés à cette seconde solution en se basant sur le savoir-faire et les compétences acquises au sein du département concernant les cristaux liquides de façon générale mais plus spécifiquement les PDLC (Polymer Dispersed Liquid Crystals). Mais avant de décrire le principe expérimental, nous allons présenter, dans la partie qui va suivre, la problématique de la dépendance de polarisation de tel système.

II.2. Théorie des coupleurs directionnels.

Les coupleurs directionnels sont constitués de deux guides identiques, généralement parallèles, placés l'un à côté de l'autre à une distance suffisante afin de permettre le transfert d'une partie de l'énergie optique voire la totalité de celle-ci de l'un des guides vers l'autre.

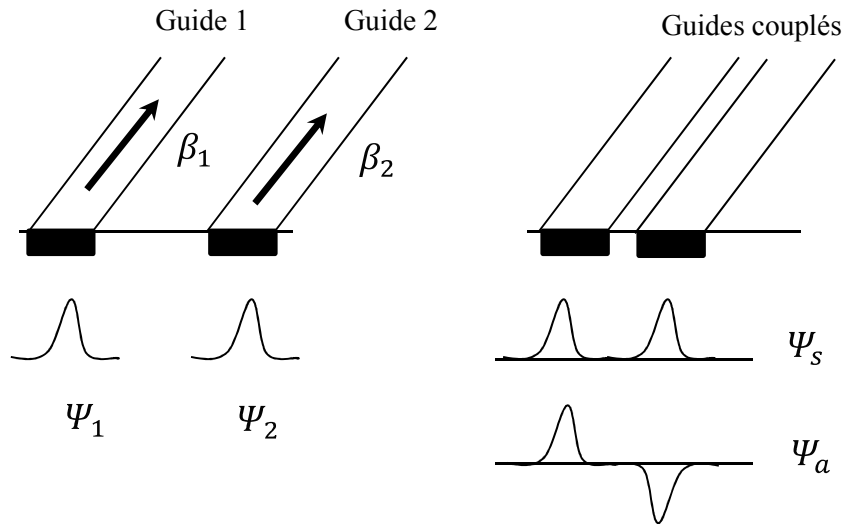


Figure 1. À gauche, deux guides indépendants non couplés et à droite deux guides couplés[2].

Afin d'expliquer le couplage entre deux guides, nous allons utiliser la méthode CMT (Coupled Mode Theory) qui est la théorie des modes couplés. Prenons le cas de deux guides 1 et 2, représenté dans la figure 1, supposés isotropes et invariants suivant la direction de propagation et supportant chacun un seul mode guidé. Dans le cas où les deux guides sont largement séparés, ils possèdent des fonctions d'ondes Ψ_1 et Ψ_2 et leurs constantes de propagation respectives β_1 et β_2 . Cependant si on rapproche les deux guides suffisamment, les deux modes Ψ_1 et Ψ_2 disparaîtront dans la nouvelle structure au profit de deux nouveaux modes « *super-modes* », notés Ψ_s et Ψ_a (S pour symétrique et A pour asymétrique) avec deux autres constantes de propagation β_s et β_a respectivement.

Lors de l'injection de la lumière dans le guide 1, les deux modes Ψ_s et Ψ_a peuvent être excités simultanément et le comportement dépend des constantes de propagation (β_1 et β_2). En effet deux cas peuvent se présenter, si les deux constantes de propagation sont égales, l'énergie lumineuse peut passer complètement vers le guide 2 (Figure 2.a). Dans le cas contraire, l'énergie transmise vers le guide 2 n'est que partielle quelle que soit la longueur du couplage (figure2. b) [2].

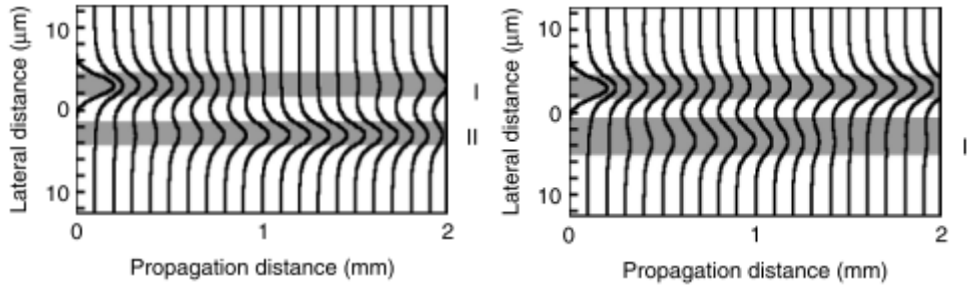


Figure 2. Système de deux guides couplés : a) $\beta_1 = \beta_2$. b) $\beta_1 < \beta_2$ [2].

Les deux constantes de propagation des super-modes sont données par les relations suivantes :

$$\beta_s = \frac{(\beta_1 + \beta_2)}{2} + \gamma \quad (\text{II.1})$$

$$\beta_a = \frac{(\beta_1 + \beta_2)}{2} - \gamma \quad (\text{II.2})$$

Avec : $\gamma = (\kappa^2 + \Delta^2)^{1/2}$ et $\Delta = (\beta_2 - \beta_1)/2$ [2] où κ la constante de couplage entre les deux guides qui est donnée par l'intégrale suivante :

$$\kappa_{12} = \frac{\omega \varepsilon_0}{4} \iint (n_1^2 - n_g^2) E_1^* E_2 dx dy \quad (\text{II.3})$$

$$\kappa_{21} = \frac{\omega \varepsilon_0}{4} \iint (n_2^2 - n_g^2) E_2^* E_1 dx dy \quad (\text{II.4})$$

Le paramètre 2Δ est appelé le désaccord de phase et n_1, n_2 et n_g sont les indices de réfraction du guide 1, guide 2 et de gaine respectivement.

Notons que dans le cas d'un couplage co-directionnel avec des guides identiques on a $\kappa_{12} = \kappa_{21} = \kappa$.

Un autre paramètre important qu'il faut tenir compte est la longueur de couplage, qui représente la distance minimale pour permettre le transfert maximal de la puissance optique du guide 1 vers le guide 2. Cette longueur est donnée par la relation suivante :

$$L = \pi / 2\gamma \quad (\text{II.5})$$

Cette relation correspond à un déphasage de π pour les modes Ψ_s et Ψ_a et qui peut aussi s'exprimer en fonction de la différence entre les constantes de propagation des deux super-modes symétrique et asymétrique $\Delta\beta = \beta_s - \beta_a$:

$$L = \pi / \Delta\beta \quad (\text{II.6})$$

Dans le cas où les deux guides sont identiques ($\Delta = 0$), la relation (II.5) peut s'écrire en fonction de la constante de couplage.

$$L = \pi / 2\kappa \quad (\text{II.7})$$

II.3. Micro-résonateurs en anneaux

II.3.1. Généralités sur les micros résonateurs en anneaux

Un Résonateur en micro anneau est composé d'un anneau (d'une taille allant de quelques à plusieurs dizaines de micromètres) et d'un ou deux guides d'ondes droits (figure 3). Utilisé comme filtre, il possède des caractéristiques similaires à celles d'un filtre Fabry Péro. Sa taille et ses caractéristiques en tant que filtre, le rendent un composant très attractif pour des applications en optique intégré et des applications VLSI (Very Large Scale Integration).

Du point de vue géométrique, on peut recenser deux principales configurations, la première est dite à couplage latéral où les guides et l'anneau sont fabriqués avec la même couche (figure 3.a). Alors que, dans le second cas, l'anneau et les guides sont fabriqués à partir de couches différentes ; on est dans le cas d'un couplage vertical (figure 3.b)

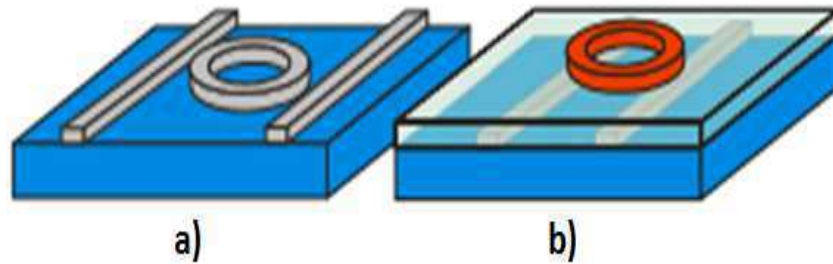


Figure 3. Représentation 3D d'un anneau avec : a) couplage latéral, b) couplage vertical [3].

Dans cette seconde configuration, le couplage entre l'anneau et le guide dépend essentiellement de l'épaisseur de la couche qui les sépare qui peut être contrôlée avec une grande précision lors du dépôt. Cependant ceci, rajoute une étape supplémentaire durant la fabrication. Ce qui n'est pas le cas dans celle à couplage latéral qui sont fait avec une seule couche seulement mais nécessite une grande précision de lithographie et de gravure afin de contrôler le gap entre l'anneau et les guides.

La forme des micro-résonateurs n'est pas restreinte à un cercle. Tout chemin géométrique qui offre une rétroaction optique peut agir tel un micro-anneau. La géométrie fréquemment utilisée est dite hippodrome (Racetrack) comme illustré dans la figure 4. Dans cette géométrie, l'hippodrome et le guide est assuré par un tronçon de guide d'onde droit ce qui permet un contrôle des coefficients de couplage plus précis aux dépens de la taille et de l'ISL (intervalle Spectral Libre). La seconde forme utilisée est le disque. Cette géométrie ne permet que difficilement l'obtention d'une propagation

monomode en raison d'une grande largeur de la section transversale. En revanche cette configuration permet de réduire les pertes. De plus, comme on l'a vu dans la figure 3, la position des guides par rapport à l'anneau n'est pas trop importante, ce qui a permis de déduire une autre configuration appelée configuration Manhattan (illustrée dans la figure 4). L'avantage de cette dernière est la possibilité d'optimiser la surface utilisée, ce qui permet une plus grande intégration.

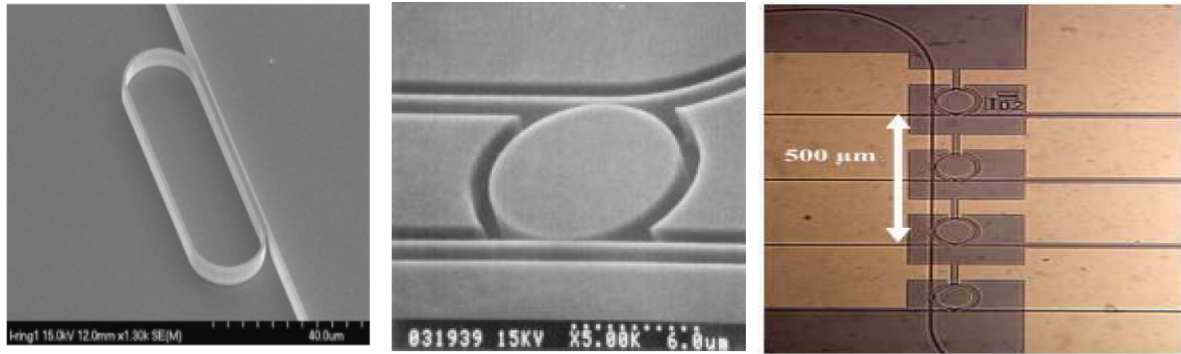


Figure 4. Autres formes de micro-résonateurs en anneaux : piste (à gauche) [4], Disque (au milieu) [5] et Configuration Manhattan (à droite) [6].

II.3.2. Principe de fonctionnement d'un micro-résonateur en anneau

Le principe de fonctionnement d'un micro-résonateur en anneau est illustré par la figure 5. Un anneau de rayon (R) et un guide d'onde sont couplés de façon évanescente et une fraction (κ_1) de l'intensité lumineuse incidente est transmise à l'anneau. Lorsque le chemin optique parcouru dans ce dernier est un multiple de la longueur d'onde effective, une interférence constructive se produit et la lumière s'accumule à l'intérieur de l'anneau, on dit que le micro-résonateur est en résonance. Comme conséquence, des franges périodiques apparaissent dans la réponse spectrale au niveau du port de sortie. Autrement dit, à la résonance le port d'extraction (Drop), qui est couplé à l'anneau avec un coefficient (κ_2), montre une transmission maximale, tandis que, le port (Through) affiche une transmission minimale.

À la résonance, Dans le cas idéal, lorsque les deux coefficients de couplage sont égaux ($\kappa_1 = \kappa_2$), toute la puissance est dirigée vers le port (drop). La lumière couplée de retour vers le port (through), après un aller-retour, subit un changement de phase de 180° par rapport à celle provenant du port (In), ce qui implique un signal lumineux nul sortant via le port (Through).

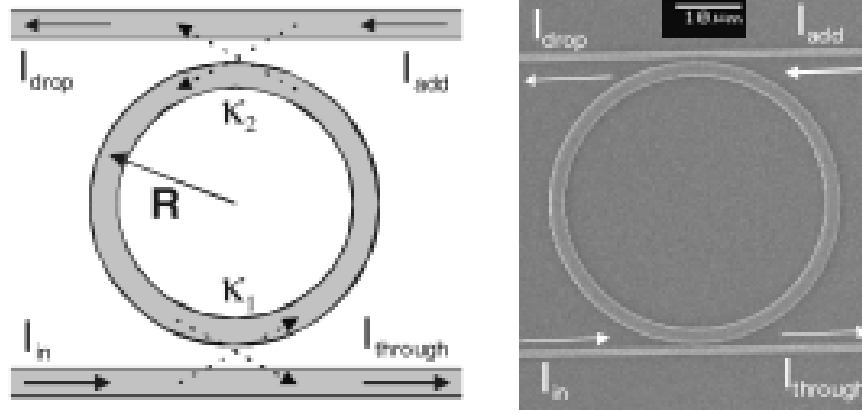


Figure 5. Représentation schématique d'un résonateur à 4 ports (à gauche) et une image MEB (à droite) [3].

Un micro-résonateur en anneau, comme tout filtre, est caractérisé par différents paramètres tels que l'ISL (Intervalle Spectral Libre) ou FSR (Free Spectral Range) en anglais. Ce paramètre caractérise la différence entre deux pics résonants successifs (comme illustré dans la figure 6). Cette différence peut être définie soit en longueur d'onde ou en fréquence (ISL_λ ou ISL_f respectivement) et qui est donnée par la relation suivante :

$$ISL_\lambda = \Delta\lambda = \frac{\lambda^2}{n_g 2\pi R} \quad \text{ou} \quad ISL_f = \Delta f = \frac{c}{n_g 2\pi R} \quad (\text{II.8})$$

Avec n_g l'indice du groupe défini par [7] comme :

$$n_g = n_{eff}(f_0) + f_0 \frac{dn_{eff}}{df} = n_{eff}(\lambda_0) + \lambda_0 \frac{dn_{eff}}{d\lambda} \quad (\text{II.9})$$

Où n_{eff} est l'indice de réfraction effectif, R le rayon de l'anneau et c la célérité de la lumière dans le vide. Un autre paramètre important dans les micros résonateurs est la largeur à mi-hauteur aussi appelée la largeur à 3dB noté FWHM pour Full Width at Half Maximum en anglais, aussi appelée bande passante du filtre, qui caractérise la largeur du pic de résonance. La finesse F permet de caractériser la qualité d'un micro- résonateur, qui est le rapport entre l'ISL et la largeur à 3dB, elle est donnée par [9] :

$$F = \frac{ISL}{FWHM} = \frac{\pi(X_1 X_2)^{1/4}}{1 - (X_1 X_2)^{1/2}} \quad (\text{II.10})$$

$$\text{Avec } X_i = \sqrt{(1 - \eta_i^2)} e^{L_r \alpha}$$

Où α et L_r correspondent, respectivement, aux pertes par unité de longueur et à la longueur du chemin optique de l'anneau et η_i est le taux de couplage. D'après [3] les composants possédant une finesse

élevée, possèdent aussi une faible largeur à mi-hauteur et une forte intensité accumulée dans l'anneau lors de la résonance. Donc les composants avec une finesse élevée sont appréciés pour des applications où des intensités élevées dans la cavité sont nécessaires comme les Lasers et les composants optiques non-linéaires. De plus, la vitesse de communication à haut-débit est limitée par la bande passante des filtres optiques et donc seuls les composants possédant une finesse moyenne allant, approximativement, de 10 à 20 et des taux de couplage relativement élevés ($\eta \sim 0.4-0.6$) sont utilisés à cet effet.

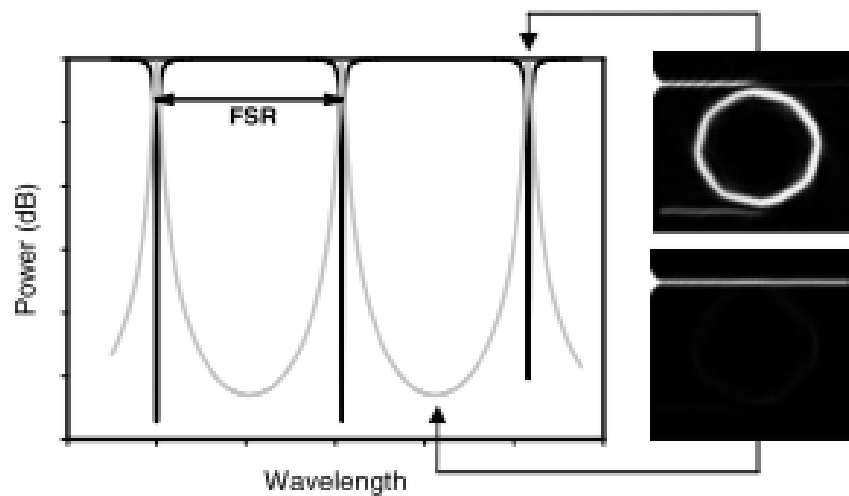


Figure 6. Réponse simulé d'un micro résonateur en anneau pour les ports through(en noir) et drop (en gris). A droite : cas de résonance (haut) et absence de résonance (en bas) [3].

La courbure de l'anneau est un paramètre très important pour la conception et la fabrication de ce genre de composant en vue d'une intégration à grande échelle. En effet, les guides courbés présentent des pertes par radiation. Donc afin de minimiser ces pertes il faut confiner plus l'onde guidée. Autrement dit pour qu'un rayon R donné, le composant présente moins de perte lorsque l'onde est plus confinée qui se traduit par un contraste d'indice plus important entre le cœur et la gaine du guide d'onde. Généralement, les pertes, dues à la courbure, sont inférieures à 1 dB par un tour complet dans l'anneau. Donc le rayon minimum de courbure est en fonction du contraste de l'indice de réfraction effectif, comme illustré dans figure 7.

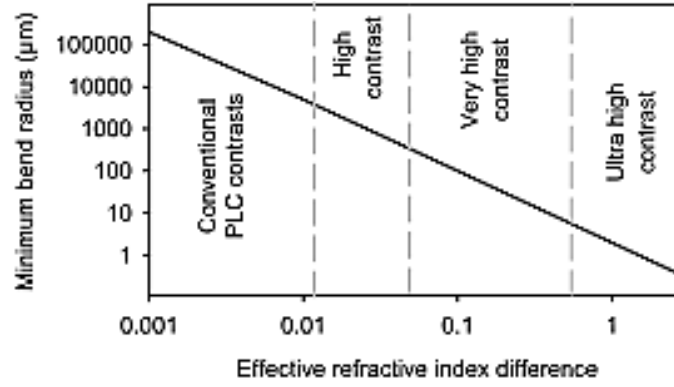


Figure 7. Rayon de courbure minimum en fonction de la différence de l'indice de réfraction effective pour des pertes <1dB/360° [3].

Comme on peut le constater sur la figure ci-dessus, un contraste élevé permet de réduire les dimensions, ce qui implique une plus grande intégration. Cependant, ce fort confinement et cette réduction des dimensions de l'anneau entraînent une dépendance à la polarisation de l'onde. Cette conséquence sera décrite dans la partie suivante.

II.3.3. Dépendance du filtre à la polarisation

Comme on l'a mentionné ci-dessus, la dépendance à la polarisation est due principalement aux caractéristiques du guide d'onde tel que les paramètres géométriques et le contraste de l'indice de réfraction. Même si un guide droit, montre une faible biréfringence qui se caractérise par des constantes de propagation, pour les polarisations TE et TM, assez proche. Ceci n'est pas vrai pour les guides courbés et les anneaux qui possèdent un faible rayon de courbure. Dans ce cas, les pics, en longueurs d'onde, de la résonance deviennent dépendants de la polarisation. Autrement dit, la longueur d'onde à la résonance, d'un anneau, entre les modes TE et TM est différente, et cette différence est exprimée par la relation suivante [3] :

$$\Delta\lambda_c = \frac{\lambda(n_{eff,TE} - n_{eff,TM})}{n_{eff}} \quad (II.11)$$

Avec $n_{eff,TE}$ et $n_{eff,TM}$ sont les indices de effectives des modes TE et TM respectivement.

En général, même les constantes de couplage entre les guides et les anneaux sont sensibles à la polarisation. La figure 8, illustre parfaitement cette dépendance à travers les longueurs de couplage. Cependant, cette dépendance peut être éliminée par un choix judicieux des dimensions géométriques et des matériaux utilisés [7,9].

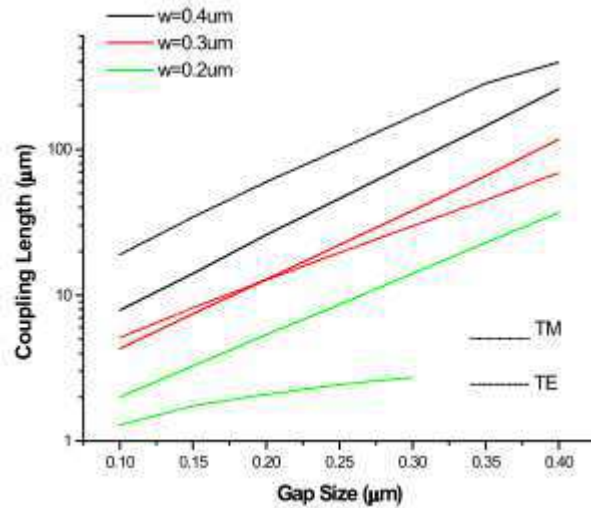


Figure 8. Simulation de la longueur de couplage en fonction du gap entre l'anneau et le guide et la largeur (w) de ce dernier [9].

Donc comme on l'a vu, la dépendance à la polarisation est un point critique pour l'utilisation d'un tel filtre dans les télécommunications. Différentes méthodes ont été proposées afin de s'affranchir de cette dépendance. On pourrait utiliser un anneau avec une section rectangulaire, ce qui permettra l'égalisation des deux indices effectifs. Cependant, cette solution nécessitera une maîtrise technologique des dimensions à 100nm près, ce qui n'est pas une chose aisée à réaliser.

Une autre solution est de séparer les deux polarisations, en utilisant un coupleur séparateur de polarisation, afin de les filtrer séparément. On distingue plusieurs stratégies, afin de réaliser cette fonction: les coupleurs en Y [10], les coupleurs MMI (Multi Mode Interference) [11] ou bien en utilisant les cristaux photoniques [12]. Certaines de ces techniques nécessitent des procédures de fabrication complexes et une maîtrise technologique très élevée. Il existe une autre méthode qui permet de fabriquer des coupleurs séparateurs de polarisation en se basant sur la biréfringence des cristaux liquides [13, 14]. C'est cette propriété des cristaux liquides que nous avons choisi pour réaliser ce genre de composant, en structurant des tronçons anisotropes dans le coupleur isotrope grâce au caractère thermotrope des cristaux liquides, comme initié par O. Castany dans ses travaux de thèse [15]. Les matériaux utilisés sont des cristaux liquides nématogènes pouvant être photopolymérisés.

II.4. Coupleurs séparateurs de polarisation optique

Dans cette partie nous allons nous intéresser au couplage entre deux guides géométriquement identiques mais anisotropes en utilisant les relations relatives aux coupleurs directionnels. Un couplage entre deux guides composé de matériaux anisotropes (comme les cristaux liquides) permet de séparer les deux polarisations TE et TM. En effet, les matériaux anisotropes possèdent, en général, deux indices de réfractons, ce qui induit à deux constantes de propagation différentes β_{TE} et β_{TM} . En rapprochant les deux guides et en se basant sur la théorie des modes couplés, la nouvelle structure peut être représentée par les supermodes symétrique et antisymétrique, et vu le caractère anisotrope, ceci conduit à l'apparition de quatre constantes de propagation β_{TE}^s , β_{TE}^{as} , β_{TM}^s , β_{TM}^{as} , ce qui donne lieu à deux longueurs de couplage différentes relatives à la polarisation TE et TM :

$$L_{TE} = \pi / \Delta\beta_{TE} = \frac{\lambda}{2\Delta n_{eff,TE}} \quad (II.12.a)$$

$$L_{TM} = \pi / \Delta\beta_{TM} = \frac{\lambda}{2\Delta n_{eff,TM}} \quad (II.12.b)$$

$$\text{Avec } \Delta\beta_{TE} = \beta_{TE}^s - \beta_{TE}^{as} \text{ et } \Delta\beta_{TM} = \beta_{TM}^s - \beta_{TM}^{as}$$

Afin de séparer convenablement les deux polarisations, on définit une troisième longueur L_c qui est la longueur du coupleur directionnel. Cette longueur doit à la fois être un multiple des deux longueurs L_{TE} et L_{TM} données par la relation (II.12), autrement dit :

$$L_c = i \times L_{TE} = j \times L_{TM} \quad (II.13)$$

Où i et j sont des entiers naturels.

Si on considère que le mode TE se propageant selon l'indice de réfraction le plus élevé, ceci impliquerait un confinement plus fort pour le mode TE ce qui a pour conséquence une longueur de couplage plus grande comparée à celle du mode TM ($L_{TE} > L_{TM}$)

La figure 9 est une représentation schématique d'un coupleur séparateur de polarisation avec un tronçon anisotrope. Où L_b est appelée longueur de couplage de la courbure en S, ce segment contribue aussi au couplage en plus de celui des segments droits [16].

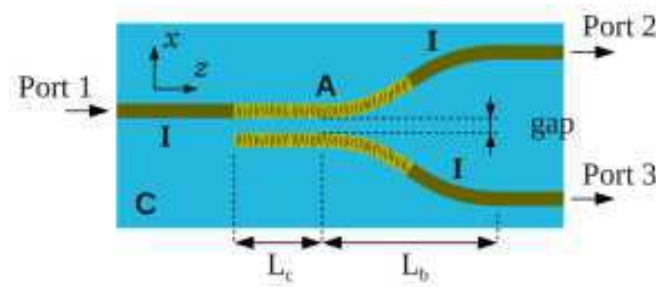


Figure 9. Représentation schématique d'un coupleur séparateur de polarisation à base de cristaux liquides polymérisable [16].

II.5. Généralités sur les cristaux liquides

II.5.1. Introduction sur les cristaux liquides

Les cristaux liquides, comme leur nom l'indique, sont des matériaux dont les propriétés se situent à la limite entre les solides cristallins et les liquides. Autrement dit, ils se comportent comme un liquide mais possèdent certaines propriétés cristallines qui se traduisent par un certain ordre orientationnel et spatial mais aussi des propriétés optiques, magnétiques et électriques propres.

Les cristaux liquides peuvent se présenter sous deux principales phases à savoir isotropes et anisotropes. Le passage de l'anisotropie à l'isotropie peut être effectué par la température dans ce cas on parle de *cristaux liquides thermotropes* ou bien par la concentration, alors les cristaux liquides sont qualifiés de *lyotropes*.

Du point de vue structurelle, les cristaux liquides peuvent être trois phases : Nématiques, smectiques, ou cholestériques.

II.5.1.a. Cristaux liquides nématiques

Ce sont les plus utilisés et les plus communs des types cristaux liquides. Le mot « Néma » trouve son origine dans le mot grec «*nêmatos*» qui signifie fil. Cette appellation trouve son explication dans les défauts topologiques qui décrivent une apparence de fils [17]. La structure des cristaux liquides nématiques est très similaire à celle illustrée dans la figure 10. Ils ne possèdent pas une position précise mais tendent vers une certaine direction. Cette dernière est généralement appelée *directeur*. Il existe un autre type de cristaux liquides possédant une structure hélicoïdale, c'est la famille des cristaux liquides cholestériques.

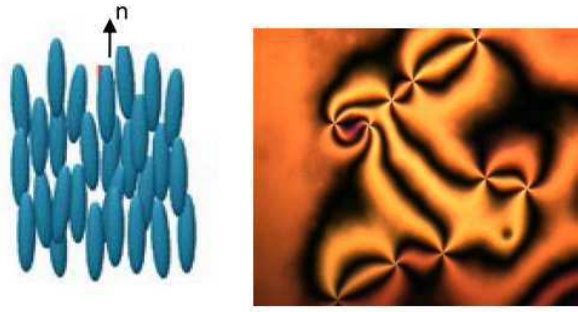


Figure 10. Cristaux liquides nématiques [17].

II.5.1.b. Cristaux liquides cholestériques

Les cristaux liquides cholestériques sont la plus ancienne phase de cristaux liquides. Leur nom vient de « Cholestérol » en raison de l'observation, par le botaniste autrichien Freidrich Richard Reinitzer, du cholestérol extrait de carotte qui montre deux points de fusion et aussi une variation de couleurs en fonction de la température [17].

Le directeur des cholestériques possède une structure hélicoïdale et la longueur de la période de cette structure est appelée le *pas cholestériques* qui peut aller d'une centaine de nanomètres à plusieurs micromètres offrant ainsi des propriétés optiques couvrant une large gamme du spectre [17].

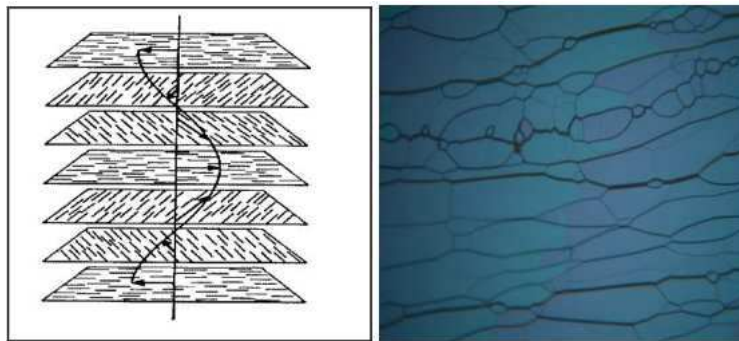


Figure 11. Cristaux liquides cholestériques, les *stries huileuses* sont des défauts typiques du cholestériques [17].

La figure 11 à gauche, est une représentation schématique de la structure cholestérique. Comme on peut le constater, le directeur est dans un plan perpendiculaire à l'axe de l'hélice. Ce dernier le serpente pour faire une rotation complète de 360° .

II.5.2. Propriétés anisotropiques

II.5.2.a. Anisotropie optique

L'anisotropie optique est l'une des plus importantes propriétés intrinsèques des cristaux liquides. Ces matériaux possèdent deux indices de réfraction, appelés indice extraordinaire et indice ordinaire, noté n_e et n_o respectivement. Autrement dit, quand un rayon lumineux traverse ce genre de matériaux il se divise en deux rayons, le premier est le rayon ordinaire dont le champ électrique est perpendiculaire à l'axe optique (directeur), voit un indice constant n_o indépendant de la direction de propagation. Tandis que le second rayon appelé extraordinaire, son champ est parallèle à l'axe optique et son indice n_e varie selon l'angle de propagation [18]. La différence entre ces deux indices de réfraction est appelée *Biréfringence* et elle notée Δn ($\Delta n = n_e - n_o$). La biréfringence des cristaux liquides peut varier en fonction de la température et de la longueur d'onde. En effet, une augmentation de la température induit à une diminution de cette biréfringence jusqu'à ce que le cristal liquide passe de la phase anisotrope à la phase isotrope. De plus, comme on l'a mentionné précédemment, lors du passage d'une onde à travers ce genre de matériaux, elle se scinde en deux ondes qui se déplacent à deux vitesses de phase différentes, ce qui engendre un retard de phase optique δ qui est donné par la relation suivante [18] :

$$\delta = \frac{2\pi d \Delta n}{\lambda_0} \quad (\text{II.14})$$

Avec d l'épaisseur de la couche du cristal liquide, Δn la biréfringence et λ_0 la longueur de la lumière dans le vide. Ce déphasage a la propriété de pouvoir modifier la polarisation de la lumière.

II.5.2.b. Anisotropie diélectrique

La réponse des molécules d'un cristal liquide sous l'effet d'un champ électrique dépend des propriétés diélectriques de ce matériau. Dans un matériau diélectrique, un champ électrique \vec{E} engendre une polarisation électrique \vec{P} qui est donnée par [17]

$$\vec{P} = \epsilon_0 \chi \vec{E} \quad (\text{II.15})$$

Où χ est le tenseur de la susceptibilité électrique

Le champ déplacement électrique \vec{D} est donnée par :

$$\vec{D} = \epsilon \vec{E} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \quad (\text{II.16})$$

Avec ε_0 est la permittivité diélectrique du vide, et $\boldsymbol{\varepsilon}$ est le tenseur diélectrique vu qu'on est dans un matériau anisotrope. Ce dernier est donné en fonction du tenseur susceptibilité électrique dans la relation (II.17) ou bien sous sa forme matricielle dans la relation (II.18).

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \varepsilon_0(1 + \boldsymbol{\chi}) \quad (\text{II.17})$$

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{\perp} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{\perp} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{\parallel} \end{pmatrix} \quad (\text{II.18})$$

Avec ε_{\perp} et ε_{\parallel} sont les composantes perpendiculaire et parallèle de la constante diélectrique par rapport au directeur [17,18]. La différence entre ces deux composantes ($\Delta\varepsilon = \varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_{\perp}$) est appelée *anisotropie diélectrique* qui peut être soit positive ou négative. Le directeur ou axe optique est l'axe propre du tenseur de permittivité associé à la valeur propre ; ε_{\parallel} .

II.5.3. Propriétés élastiques

Le comportement élastique d'un cristal liquide, sous l'influence d'une contrainte comme un champ électrique ou bien à l'interface avec la surface d'un solide, est déterminée par trois constantes élastiques k_{11} , k_{22} , k_{33} associés à trois déformations de types respectivement éventail(Splay), torsion(Twist) et courbure (Bend) comme illustrée dans la figure 12.

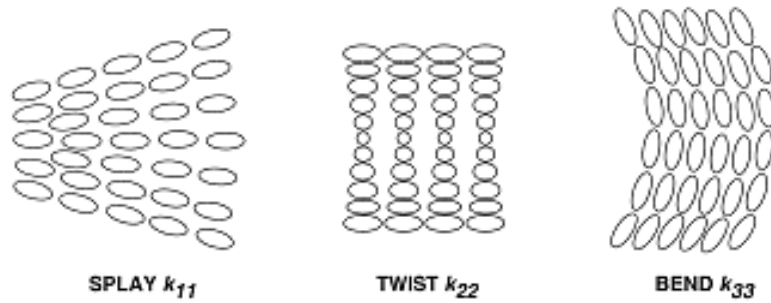


Figure 12. Représentation schématique des différentes déformations élastiques [18].

Les constantes élastiques sont des paramètres moléculaires qui décrivent les forces de rappel sur une molécule de cristal liquide en réponse à une force externe qui déforme le milieu de sa configuration la plus stable. Ces constantes élastiques régissent les réponses spatiale et temporelle du directeur à des champs électrique et magnétique.

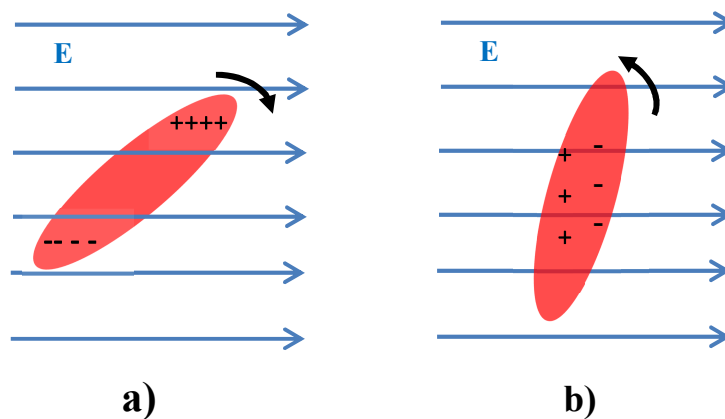
Après l'annulation du champ électrique, le retour à l'équilibre des molécules est assurée par les forces élastiques qui sont créées par la surface entre le cristal liquide et les couches d'orientation qui couvrent les substrats d'une cellule par exemple.

II.5.4. Commutation des cristaux liquides

Dans cette partie, nous allons nous intéresser au comportement du cristal liquide sous l'effet d'un champ électrique.

II.5.4.a. Couplage diélectrique

Lorsqu'on applique un champ électrique, l'orientation des molécules du cristal liquide dépend du signe de l'anisotropie diélectrique. Si cette anisotropie est positive ($\Delta\epsilon > 0$), les molécules tendent à s'orienter parallèlement au champ électrique (figure 13.a), dans le cas contraire ($\Delta\epsilon < 0$) elles s'orientent perpendiculairement comme illustré par la figure 13.b.



**Figure 13. L'orientation d'une molécule cristal liquide sous l'effet d'un champ électrique dans le cas :
a) anisotropie positive, b) anisotropie négative.**

Les anisotropies diélectrique et optique des cristaux liquides permettent de contrôler électriquement l'indice de réfraction, ce qui permet leur utilisation dans diverses applications notamment les afficheurs à cristaux liquides.

II.5.4.b. Mécanisme de commutation des CLs nématiques

Lorsqu'on applique un champ électrique au bord d'une cellule remplie de cristal liquide nématique, le mécanisme de réorientation des molécules est régi par le couple diélectrique. Ce dernier est équilibré par le couple élastique au sein du cristal liquide et le taux de réorientation augmente progressivement avec l'augmentation de l'amplitude du champ électrique. L'indice de réfraction du matériau commence à diminuer en raison de la réorientation des molécules qui est induite par le champ électrique. Autrement dit, la biréfringence voit sa valeur diminuer avec l'application du champ électrique.

Au-dessous d'une valeur de champ, nommé champ critique ou champ de seuil, le directeur est insensible. Cependant, une fois que cette valeur dépassée le directeur continue à s'orienter avec le

champ électrique. Dans le cas d'une cellule remplie d'un cristal liquide nématique dont l'alignement est planaire, les molécules commencent à s'orienter vers un état homéotrope. L'état homéotropique apparaît noir sous des polariseurs croisés d'où le passage de la cellule de l'état ON à l'état OFF. La valeur du champ critique est donnée par la relation suivante [17] :

$$E_c = 2\pi / d(\pi K_1 / \Delta\epsilon)^{1/2} \quad (\text{II.19})$$

Avec K_1 est le tenseur de la constante élastique relative à la déformation de type éventail, d l'épaisseur du cristal liquide et $\Delta\epsilon$ est l'anisotropie diélectrique.

Les temps de réponses sont donnés par les relations ci-dessous [17] :

$$\tau_{ON} = \frac{\eta_1 d^2}{\pi^2 k_{11}} \left(\frac{\Delta\epsilon}{\pi^2 k_{11}} V^2 - 1 \right)^{-1} \quad (\text{II.20})$$

$$\tau_{OFF} = \frac{\eta_1 d^2}{\pi^2 k_{11}} \quad (\text{II.21})$$

Où d est l'épaisseur de la couche du cristal liquide, $\Delta\epsilon$ est l'anisotropie diélectrique, k_{11} est la constante élastique associée à la déformation éventail, η_1 est la viscosité du cristal liquide et V la tension appliquée.

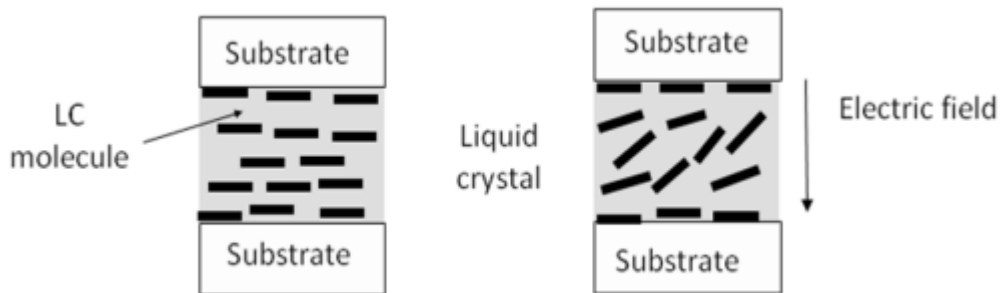


Figure 14. Réorientation d'un cristal liquide nématique sous l'effet d'un champ électrique [17].

II.6. Fabrication et caractérisation des coupleurs séparateurs de polarisation.

Cette partie est dédiée à la fabrication et la caractérisation des coupleurs séparateurs de polarisation illustrés dans la figure 9. Ce travail réalisé conjointement au département d'optique de Telecom Bretagne compétent dans le domaine des cristaux liquides et au CCLO (Centre Commun Lannionais d'Optique) à Lannion spécialisé dans la fabrication des guides d'ondes. L'objectif du projet est de fabriquer un filtre à base de matériaux polymères contenant un séparateur de polarisation TE et TM avec tronçon anisotrope pour les filtrer séparément grâce à deux micro résonateurs en anneaux avant de les recombinaison comme illustré dans la figure 15.

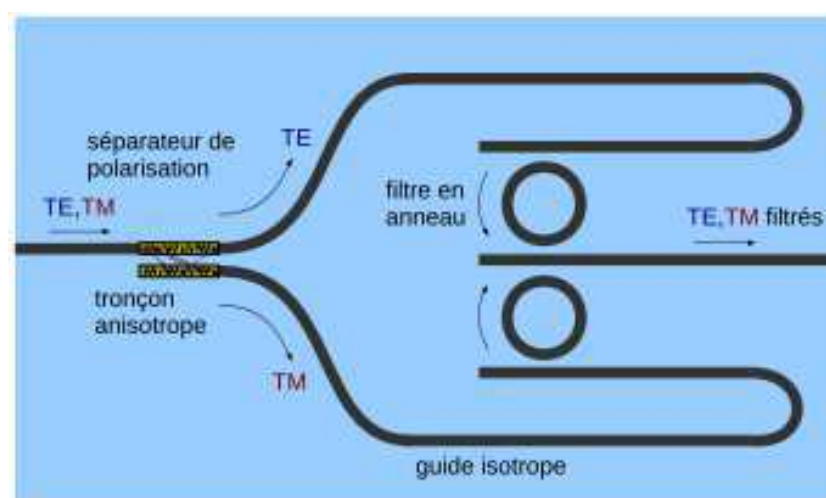


Figure 15. Filtre optique composé d'un séparateur de polarisation et de deux micros résonateurs en anneaux.

Les étapes de fabrication pour réaliser le coupleur séparateur de polarisation sont données par la figure suivante.

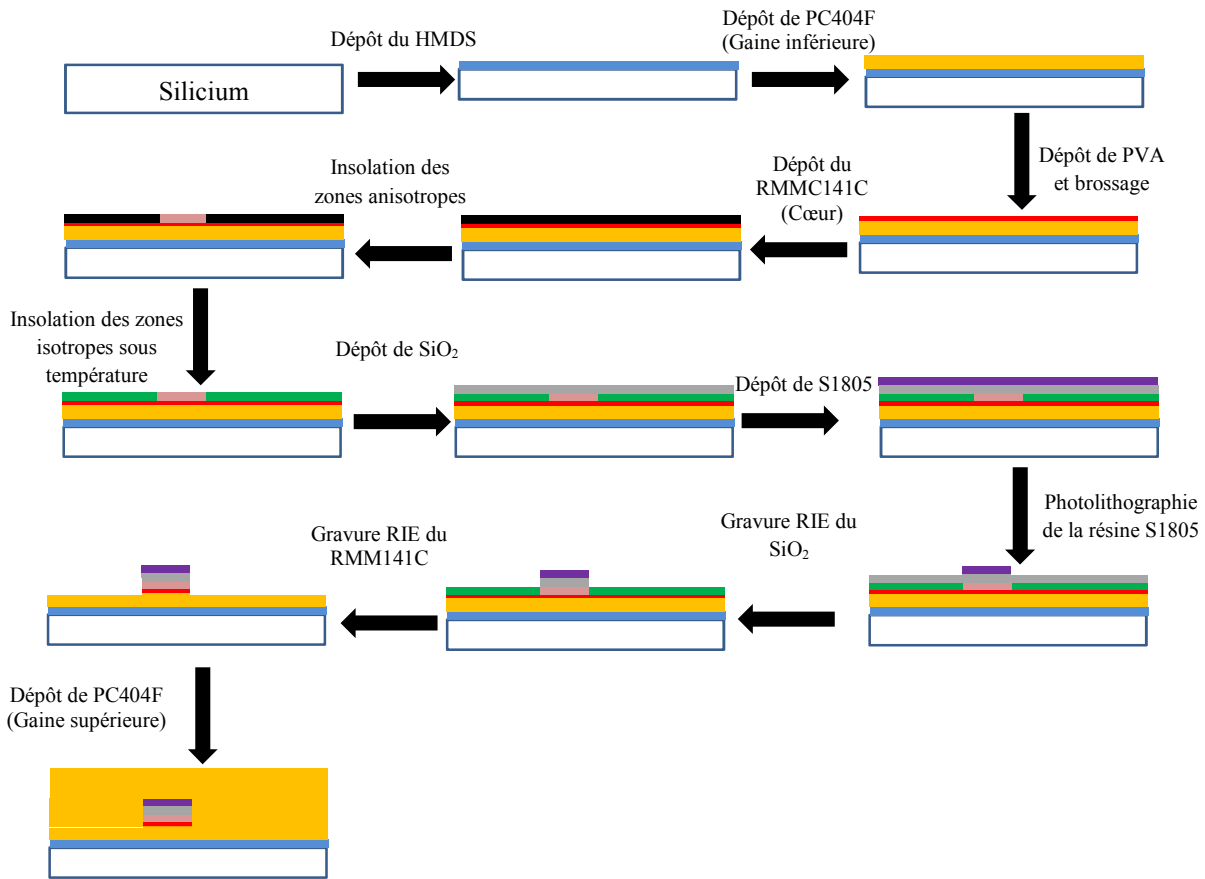


Figure 16. Etapes de fabrication du coupleur séparateur de polarisation à base de cristaux liquides.

II.6.1. Préparation et caractérisation des matériaux utilisés

II.6.1.a. Cristaux liquides polymérisables

En raison de tronçons anisotropes au sein des guides isotropes, nous avons choisi d'utiliser un matériau thermotrope à base de cristaux liquides cela signifie qu'il est anisotrope à température ambiante et qui peut être isotrope en fonction de la température. De plus il doit être polymérisable, d'où la nécessité d'utiliser un PDLC (Polymer Dispersed liquid crystal) qui est un mélange de cristaux liquides et de monomère qui peuvent se polymériser en présence d'un rayonnement ultra-violet. Ce qui nous a amené à choisir un matériau de type RMM (Reactive Mesogen Mixtures) de MERK KGaA qui peut être acheté sous forme préparée tel que les RMS (Reactive Mesogen Solutions) comme le RMS03-001C et RMS03-013C qui sont des solutions de 30%, dans le PGMEA (Propylene Glycol Monomethyl Ether Acetate), de RMM34C et RMM141C respectivement. Une couche de 1.5µm peut être obtenue par un dépôt en spin coating de la solution RMS03-013C avec une vitesse de 600tr/min. Cependant, dans le but d'obtenir une couche plus uniforme l'augmentation de la vitesse de spin est nécessaire, nous avons donc choisi de préparer une nouvelle solution avec une concentration plus élevée de l'ordre de 35 à 40% [16]. Pour cela, on a acheté le RMM141C, qui se présente sous forme

d'une poudre. La nouvelle solution est préparée avec 34% de RMM141C, 33% de cyclopentanone et 33% de PGMEA, puis le mélange est chauffé à 50°C durant deux minutes afin de permettre une dissolution complète du matériau. Le cyclopentanone, qui est un solvant à évaporation rapide (vapeur saturante de 11hPa@20°C), permet de laisser une couche suffisamment épaisse. Cependant, son utilisation comme l'unique solvant engendre un mauvais alignement du cristal liquide, d'où la nécessité d'ajouter un second solvant le PGMEA dont sa vitesse d'évaporation est plus faible (vapeur saturante de 4.9hPa@20°C), afin d'améliorer l'alignement. On a aussi effectué les mesures des indices de réfraction en phases anisotrope (figure 17) et isotrope (figure 18) de ce matériau, préalablement polymérisé, dans la gamme de longueurs d'onde allant de 1.51µm à 1.61µm grâce au M-lines (au CCLO Lannion). On a constaté que les indices sont relativement constants et valent, dans le cas isotrope $n_i = 1.56$ et dans le cas anisotrope l'indice extraordinaire $n_e = 1.647$ et l'indice ordinaire $n_o = 1.52$.

Notons que le processus pour la préparation des échantillons isotropes et anisotropes sera décrit, dans la partie concernant la fabrication des guides.

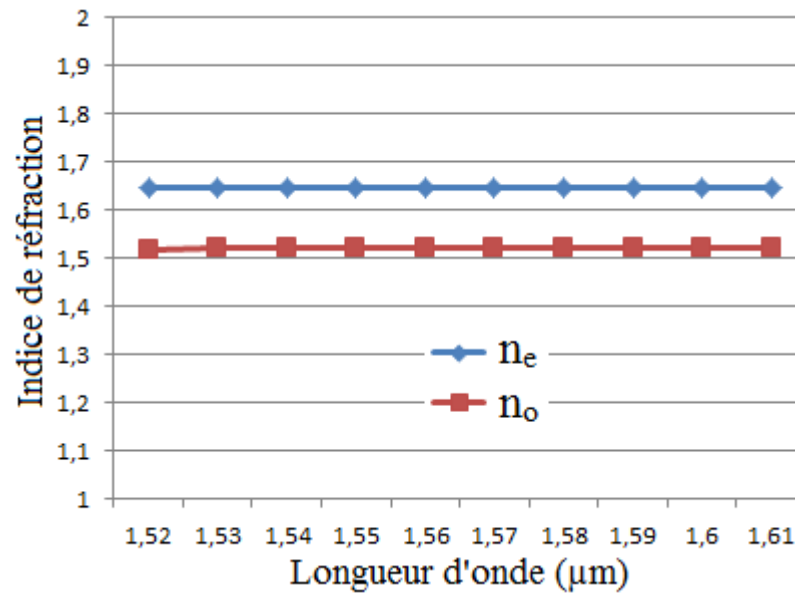


Figure 17. Mesures au M-line des indices extraordinaire (n_e) et ordinaire (n_o) du RMM141C en phase anisotrope.

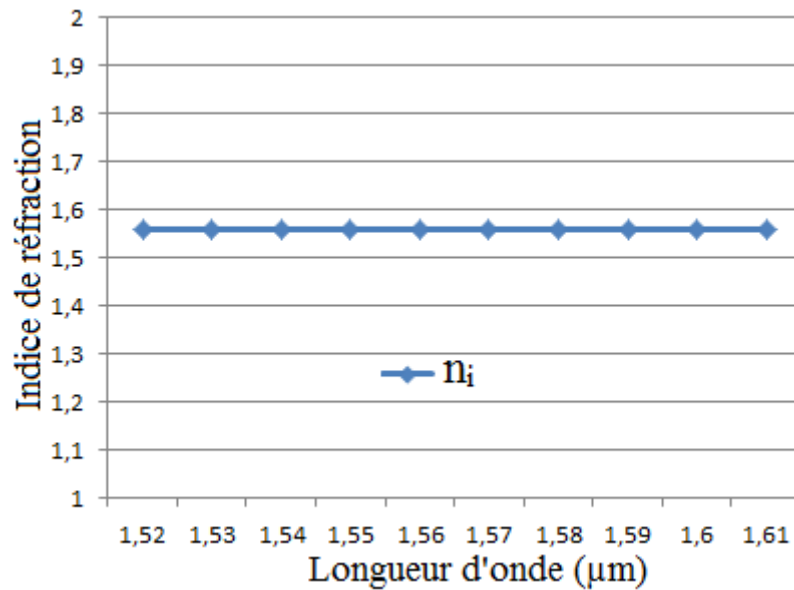


Figure 18. Mesures au M-line des indices de réfraction (n_i) du RMM141C en phase isotrope.

II.6.1.b. Polymère de gaine

Afin de guider la lumière dans le cœur, il faut disposer d'une gaine optique de plus faible indice de réfraction que ce dernier. SSCP Corporation, offre une gamme très intéressante de polymères fluorés à faible indice. Castany et al. [16] ont étudié deux types de ces matériaux à savoir PC-430 et PC-404F qui sont photo-polymérisables. Chacun de ces deux matériaux se polymérise à une longueur d'onde UV différente, ceci est dû au type de photo-initiateur utilisé. En effet, le PC-430 se polymérise aux alentours de 250 nm alors que le PC-404F, quant à lui, se polymérise à 365nm. De plus, afin de mieux séparer optiquement le cœur du substrat (qui peut être en verre ou bien en silicium) il faut minimum $5\mu\text{m}$ voire plus [15]. Notre choix c'est porté naturellement sur le polymère Fluoré PC-404F. Une solution préparée à 74% dans du cyclopentanone puis filtré à $0.45\mu\text{m}$, permet d'obtenir en un seul dépôt une couche assez uniforme d'approximativement $10\mu\text{m}$. on a aussi effectué des mesures d'indice de réfraction en infrarouge dans une gamme de longueur d'onde allant de $1.52\mu\text{m}$ à $1.61\mu\text{m}$ (figure 19). On constate que l'indice de gaine n_g est quasiment indépendant de la longueur d'onde et il vaut 1.397.

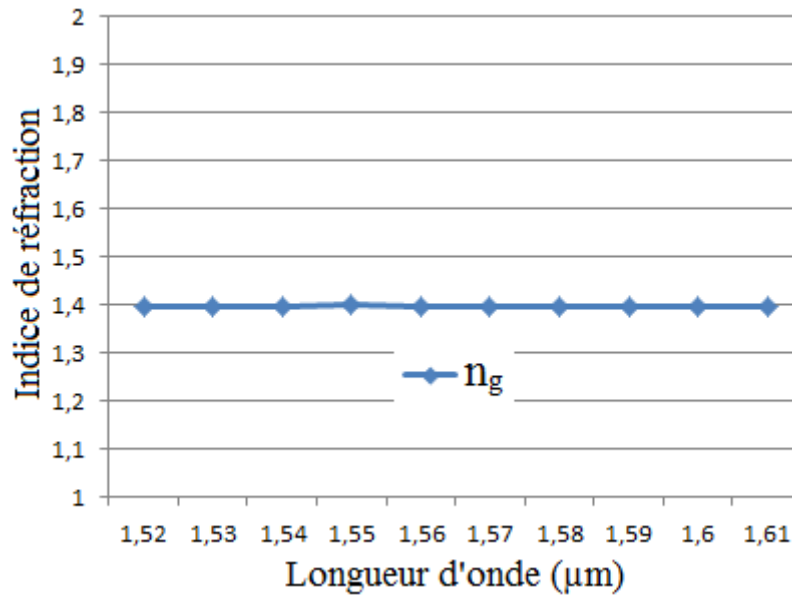


Figure 19. Mesures au M-line des indices de réfraction (n_g) du PC404F

II.6.1.c. Couche d'alignement

La couche qu'on a décidé d'utiliser pour un alignement planaire du RMM141C est le PVA (PolyVinil Alcohol), qui se présente à l'achat sous forme de cristaux. Afin de préparer une solution, on mélange 2% de PVA et 15% d'IPA (Iso Propanol) dans de l'eau et filtrée à $0,2\mu\text{m}$. Cette solution permet d'avoir un dépôt d'environ 20nm qui sera séché à 80°C durant 2 minutes et brossé par la suite avec un rouleau de velours afin d'obtenir l'alignement souhaité. Notons qu'il faut traiter la gaine (PC-404F), fortement hydrophobe, au plasma d'oxygène pour permettre d'améliorer la mouillabilité et ainsi obtenir un dépôt de qualité.

II.6.2.Fabrication des coupleurs séparateurs de polarisation

Durant la fabrication on a utilisé deux types de substrats, à savoir le verre et le Silicium. Cependant, pour la fabrication finale nous avons opté pour les wafers en silicium, en raison de la facilité de clivage.

Le wafer de silicium, de deux pouces, est lavé aux ultrasons avec une solution à base de l'eau dionisée ($16\text{ M}\Omega\cdot\text{cm}$) contenant 5% de Décon90 le tout sous une température de 45°C durant une demi-heure. Le rinçage à l'eau pure s'est fait dans les mêmes conditions de température et de temps. Le séchage s'est effectué sur une plaque chauffante durant 30 minutes à une température de 100°C . Un traitement au plasma O_2 est réalisé durant 50 secondes afin d'améliorer la mouillabilité.

On dépose, ensuite, une couche de HMDS (Hexamethyldisilazane) sur un wafer de silicium, afin d'augmenter l'adhérence du polymère de gaine par la suite. Un volume de 0.5 mL de La solution de polymère de gaine préparé, à savoir 74% de PC-404F dans du cyclopentanone et filtrée à $0.45\ \mu\text{m}$, est déposée par spin avec une vitesse de 1200 Tr/min et une accélération de 3500Tr/min/sec durant une minute ce qui permet d'obtenir une couche d'environ $10\mu\text{m}$. La polymérisation est faite grâce à une lampe UV (365nm) dont la puissance de $14.7\text{mW}/\text{cm}^2$ durant 100 secondes sous atmosphère inerte (azote), avec une purge durant 2 minutes avec un débit de 20mL/s puis 3mL/s pendant toute la durée d'insolation, car l'oxygène empêche la polymérisation. L'échantillon est recuit par la suite durant 3 minutes avec une rampe de température allant de $120\ ^\circ\text{C}$ à $160\ ^\circ\text{C}$. Cette dernière étape permet d'éliminer le solvant restant.

Une fois la couche de gaine réalisée et un traitement au plasma d'oxygène effectué, nous avons déposé une couche d'alignement à base de PVA. Notons qu'on a aussi testé le R-1130 et nous n'avons relevé aucune différence. La couche de PVA est déposée par spin-coating suivi d'un recuit à 80°C durant 2 minutes. Cela permet d'obtenir 20 nm environ de couche d'alignement dans laquelle on imprime l'orientation grâce à la machine de brossage contenant un rouleau de velours.

Après le brossage, on a déposé une couche de la solution RMM141C décrite précédemment avec une vitesse de 1500Tr /min durant 60 secondes, ceci permet d'obtenir une couche uniforme d'une épaisseur de $1.5\mu\text{m}$, puis insolée avec une énergie de $15,6\ \text{mJ}/\text{cm}^2$ (avec une puissance de $25\text{mW}/\text{cm}^2$ durant 5 secondes et en utilisant un filtre UV qui permet de transmettre 12.5% du rayonnement), via le masque illustré dans les figures 20 et 21, afin de définir les tronçons anisotropes des coupleurs. Lors de l'alignement le masque est séparé de l'échantillon grâce à des espaceurs de $18\mu\text{m}$. Notons que l'insolation est effectuée juste après le dépôt car le RMM141C se cristallise après quelques dizaines de minutes s'il n'est pas polymérisé et aussi elle doit être faite sous une atmosphère inerte avec un débit de 3mL/seconde durant toute la durée de l'insolation afin d'assurer une polymérisation totale [16].

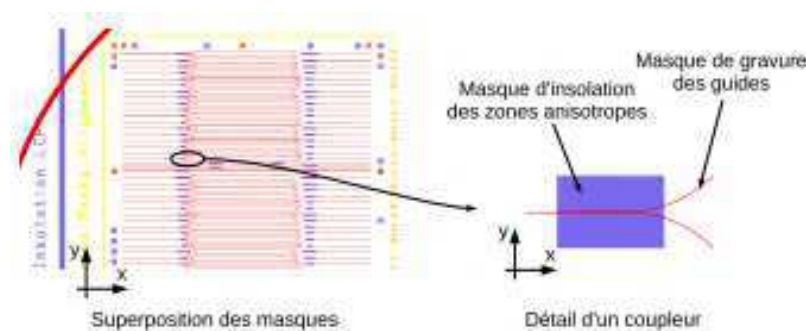


Figure 20. Masque dessiné par le CCLO pour la réalisation des guides (en Jaune : les marques d'alignement, en bleu les zones anisotropes et en rouge les guides) [16].



Figure 21. Images microscope optique des masques (à gauche les zones anisotropes et à droite les coupleurs)

Afin de réaliser la partie isotrope, l'échantillon est chauffé à 80°C pour faire passer le reste du cristal liquide non polymérisé en phase isotrope. La polymérisation de celui-ci est faite avec une énergie de $1\text{J}/\text{cm}^2$ (avec une puissance de $20\text{mW}/\text{cm}^2$ durant 50secondes) le tout sous atmosphère inerte (mêmes paramètres que ceux du PC404F). Ce qui permet d'obtenir une couche de cristal liquide polymérisé avec des zones isotropes et anisotropes sur le même substrat, comme schématisé par la figure 21.a. On a constaté que la transition de la zone anisotrope vers la zone isotrope se fait progressivement.

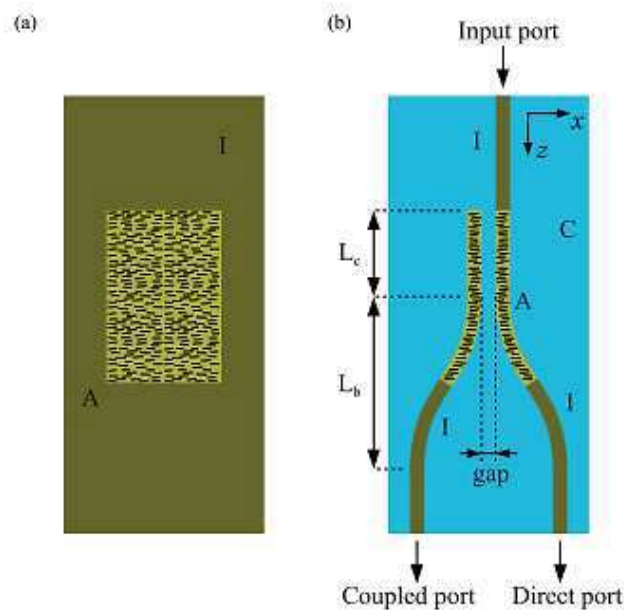


Figure 22. Représentation schématique de a) structuration des zones isotropes et anisotropes. b) structure finale des coupleurs séparateur de polarisation.

L'étape suivante, qui est fait au CCLO, est la gravure des guides dans la couche de RMM141C par RIE (Reactive Ion Etching) au plasma d'oxygène en utilisant un masque en oxyde de silicium (SiO_2). Une première étape consiste à déposer, par pulvérisation, une couche d'environ 25 nm de SiO_2 afin de

servir de masque de gravure des polymères, suivi par une autre couche de résine positive S1800. Dans cette dernière couche, les coupleurs sont transférés via le second masque (figure 21 à droite). Ce qui crée des ouvertures à travers la résine qui va permettre de graver l'oxyde de silicium par le RIE en utilisant un plasma de SF_6 . Une fois le SiO_2 gravé, on procède à la gravure de la couche de polymère avec un plasma oxygène. Cette étape est suivie grâce à un interféromètre laser qui permet de stopper la gravure après une sur-gravure de la gaine, afin d'assurer une gravure complète de la couche de RMM141C. Le résultat est illustré par la figure 23 qui est un ensemble d'images MEB réalisées au sein d'IFREMER (Institut Français de Recherche pour l'Exploitation de la MER) de Brest.

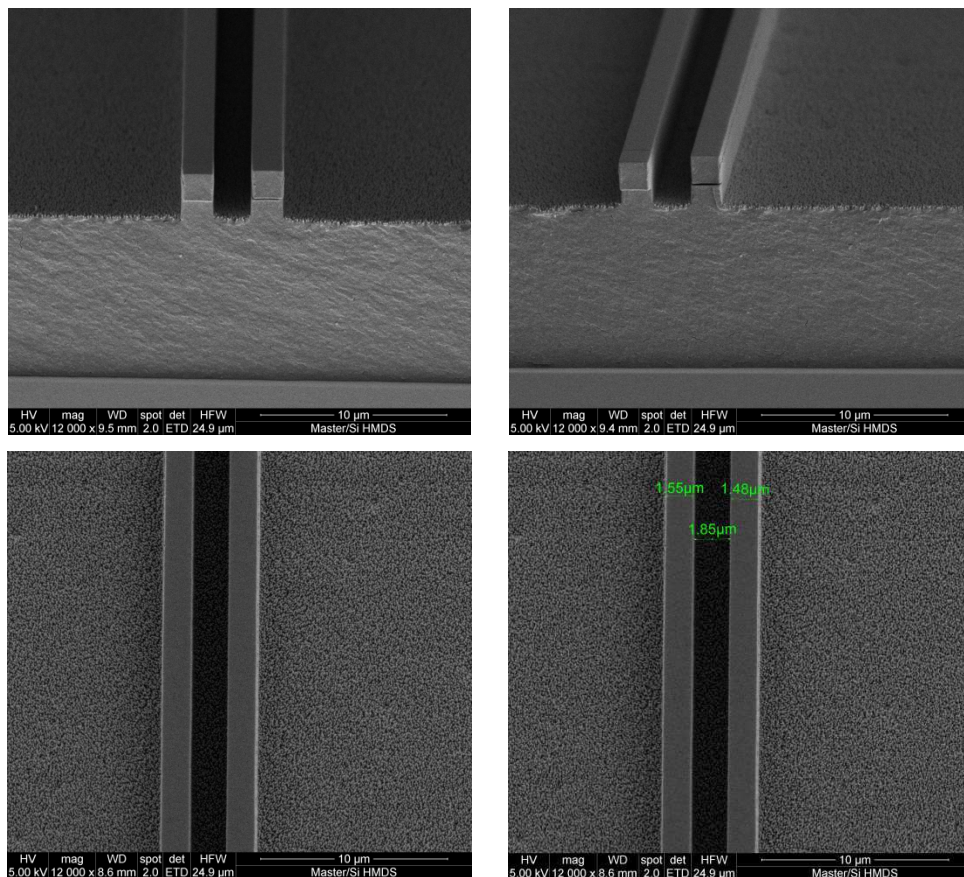


Figure 23. Images MEB des guides après gravure au plasma à oxygène.

Une dernière étape pour achever la fabrication est de couvrir les guides par le polymère de gaine PC-404F avec les mêmes paramètres que précédemment et ainsi former la partie supérieure de la gaine. Finalement, l'échantillon est clivé afin de dégager les facettes des guides. Comme on peut le constater dans la figure 24, avec cette méthode on obtient des facettes bien propres et qui permettront la caractérisation du composant dans la partie suivante.

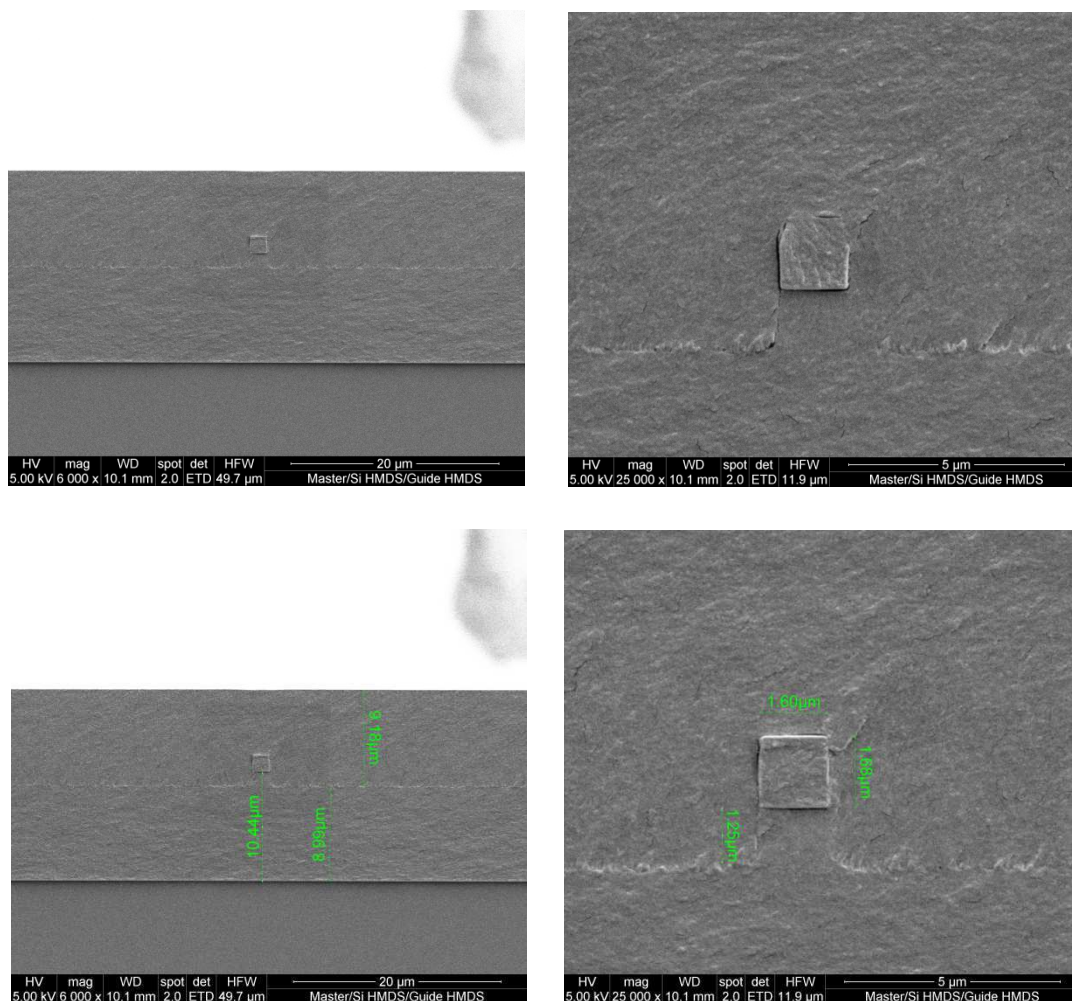


Figure 24. Images MEB des guides après dépôt de la gaine supérieure et clivage.

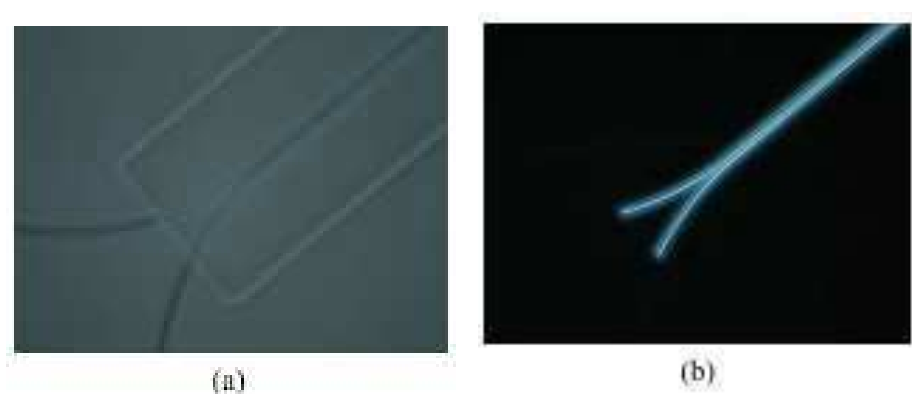


Figure 25. Images microscopes d'un coupleur séparateur de polarisation. a) observation sous lumière non polarisée. b) sous polariseurs croisés.

On utilisant un microscope avec polariseurs croisés, on constate que la structuration des tronçons anisotropes dans les coupleurs est bien réalisée, comme illustré dans la figure 25.b.

II.6.3. Caractérisation optique

La lumière est injectée via une fibre possédant une microlentille qui permet de focaliser le faisceau avec un waist d'un diamètre de $1.8\mu\text{m}$. les plans de sortie des coupleurs sont observés avec un objectif de microscope et une caméra InGaAs infrarouge. Lorsqu'on tourne la polarisation d'entrée, on constate le passage d'une polarisation vers le guide couplé tandis que l'autre est transmise via le même guide d'injection. Ce comportement, illustré par la figure 26, est démontré pour un coupleur possédant un gap de $1.8\mu\text{m}$ entre deux guides de largeur de $1.4\mu\text{m}$ et une hauteur de $1.5\mu\text{m}$ et une longueur de couplage de 1.3mm . Comme on peut l'observer dans la même figure, dont deux plans de guides de sortie sont séparés de $400\mu\text{m}$, lorsqu'on tourne la polarisation de 90° la lumière est dirigée d'une sortie vers l'autre.

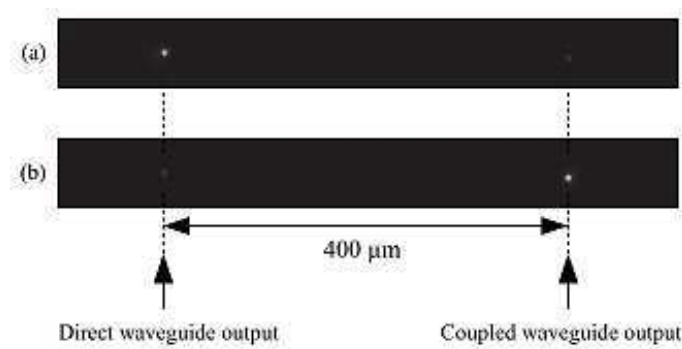


Figure 26. Observation des plans de sortie du coupleur avec une caméra infrarouge. Photos prises dans le cas où la polarisation d'entrée est a) horizontale, b) verticale.

Quand la polarisation d'entrée est horizontale, la lumière voit l'indice extraordinaire n_e ce qui implique un fort confinement en raison d'un fort contraste d'indice avec la gaine. Ceci a pour conséquence une propagation dans le même guide (figure 26.a). Cependant, si la polarisation d'entrée est verticale, la lumière voit l'indice ordinaire n_o , qui est plus faible de l'indice extraordinaire, entraînant ainsi une perte de confinement, ce qui permet à la lumière de passer totalement, par couplage, vers l'autre guide le long d'une distance égale à la longueur de couplage comme on peut l'observer sur la figure 26.b.

Nous avons aussi mesuré la transmission en récoltant la lumière de sortie avec une deuxième fibre comportant une microlentille. Pour un guide de 1cm de long contenant un tronçon anisotrope de 1.3mm , les pertes d'insertion sont de 2.4 dB . Pour les coupleurs, la somme des intensités des deux ports de sortie correspond aussi à des pertes inférieures à 3 dB . Ces faibles pertes d'insertion montrent une bonne qualité des guides d'ondes et des facettes.

Le taux de couplage est déterminé par l'injection d'une polarisation linéaire dans le port d'entrée et la mesure de la lumière transmise aux deux sorties directe et couplée. Les mesures de ce taux en fonction de la longueur d'onde, pour deux polarisations verticale et horizontale, sont illustrées par la figure 27.

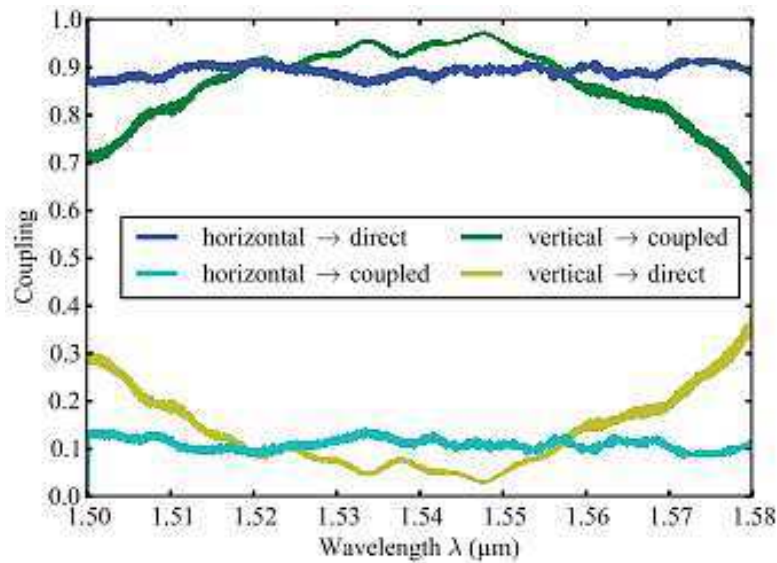


Figure 27. Mesure du taux de couplage en fonction de la longueur d'onde.

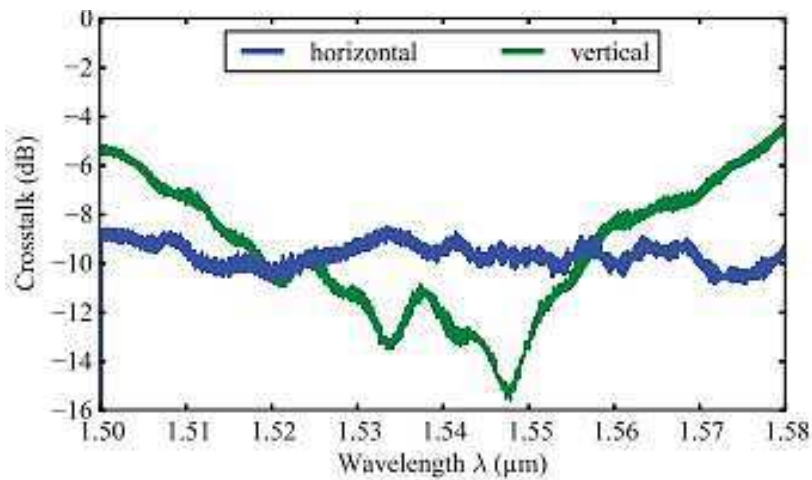


Figure 28. Mesure de diaphonie en fonction de la longueur d'onde pour une polarisation verticale ou horizontale.

Dans la figure 28, on constate que la diaphonie est d'environ -10 dB dans le cas d'une polarisation horizontale et ce sur toute la gamme de longueur d'onde (de 1.5 μm à 1.58 μm). Par contre, dans le cas d'une polarisation verticale, elle est inférieure à -10 dB entre 1.52 μm et 1.56 μm. ce résultat, montre le fonctionnement du coupleur anisotrope autant qu'un coupleur séparateur de polarisation. Pour une polarisation horizontale, le comportement est indépendant de la longueur d'onde, ceci est dû au fait que la mode ne voit que peu le second guide. Alors que pour une polarisation verticale, le comportement est dépendant de la longueur d'onde, qui est une conséquence

du couplage des guides d'ondes [19]. Une simulation utilisant la méthode BPM (Beam Propagation Method) montre qu'on peut obtenir une diaphonie de -20 dB avec un coupleur dont le gap est de $2.5\mu\text{m}$ et une longueur de couplage de $940\mu\text{m}$. Dans ce cas les tolérances sont $\pm 0.05\mu\text{m}$ pour le gap et $\pm 60\mu\text{m}$ pour la longueur de couplage [16].

II.7. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté les travaux effectués dans le cadre du projet ANR « Select Acces » qui sont axés sur le développement et la caractérisation d'un coupleur séparateur de polarisation en polymère à base de cristaux liquides. Ceci, permet de s'affranchir de la sensibilité du filtrage à la polarisation. Nous avons montré que, via un protocole expérimental simple, la possibilité de réaliser ce genre de composant en structurant des tronçons anisotropes. Les résultats cités ci-dessus on fait l'objet d'une publication dans le journal IEEE Photonics Tehnology [20].

Références

- [1]: Introduction to DWDM Technology, S.V.Kartalopoulos, Wiley–IEEE Press, 2000.
- [2]: Integrated Photonics Fundamentals, Livre Wiley, G. Lifante, 2003.
- [3]: Wavelength filters in fibre optics, D. H. Genzebroek et A. Driessen, Livre Springer Series in Optical Science, 2006.
- [4]: Micro-Racetrack Notch Filters Based On InGaAsP/InP High Mesa Optical Waveguides, W.S. Choi, W. Zhao, J-W. Bae, I. Adesida, B-A. Yu, Y.L. Lee et J-H. Jang, Japanese Journal of Applied Physics, Vol.46, N.4B, Pages 2434-2439, 2007.
- [5]: FDTD Microcavity Simulations: Design and Experimental Realization of Waveguide-Coupled Single-Mode Ring and Whispering-Gallery-Mode Disk Resonators, S.C.Hagness, D. Rafizadeh, S.T. Ho et A. Taflove, Journal of Lightwave Technology, Vol.15, N.11, Pages 2154-2165, 1997.
- [6]: Integrated optical add-drop multiplexer using thermally tunable microring resonators, E.J. Klein, D.H.Geuzebroek, H.Kelderman et A. Driessen, Proceedings Symposium IEEE/LEOS Benelux Chapter, 2004, Ghent.
- [7]: Optical Filter Design and Analysis, Livre Wiley, J.H.Zhao et C.K.Madsen, 1999.
- [8]: Experimental study of Integrated –optics microcavity resonators: Toward an all-optical switching device, F.C. Blom, D.R.Van Dijk, H.J.W.Hokestra, A.Driessen, et T.J.A. Pompa, Applied Physics Letters, Vol.71, N.6, pages 747-749, 1997.
- [9]: Polarization dependence in waveguide-coupled micro-resonators, M.K. Chin, Optics Express, Vol.11, N.15, Pages 1724-1730,2003.
- [10]: Analysis of a Y-branch Polarization Splitter Using the Full-Vectorial Beam-Propagation Method, J.YAMAUCHI, S.KOBORI, et H.NAKANO, 17th international Conference on Applied Electromagnetics and Communication (ICECom 2003), Pages 71-74, 2003, Croatie.
- [11]: An MMI-based polarization splitter using patterned metal and tilted joint, K. Kojima, W. Yuan, B. Wang, T. Koike-Akino, K. Parsons, S. Nishikawa, et E.Yagyu, Vol.20, N.26, pages 371-376, Optics Express, 2012.
- [12]: A compact polarization beam splitter based on a multimode photonic crystal waveguide with an internal photonic crystal section, Y. C. Shi, Vol.103, Pages 393-401, Progress In Electromagnetics Research (PIER), 2010.
- [13]: Proposal and Analysis of an ultrashort directional coupler polarization splitter with an NLC coupling layer, K-C. Lin, W-C Chuang, et W-Y. Lee, Vol.14, N.11, Pages 2571-2553, Journal of Lightwave Technology, 1996.
- [14]: Design of integrated polarization beam splitter with liquid crystal, Q. Wang, G. Farrell, et Y. Semenova, Vol.12, N.6, Pages 1349-1353, IEEE Journal of selected topics in Quantum Electronics, 2006.
- [15] : Microtechnologie optoélectronique incluant des matériaux mésomorphes, O. Castany, Thèse de doctorat, Telecom Bretagne, Brest, 2010.

[16]: Polymer waveguides featuring isotropic and anisotropic sections: application to the fabrication of polarization splitters, O.Castany, K. Sathaye, A. Malouf, M. Gadonna, I. Hardy, et L. Dupont, Vol.290, N.1, Pages 80-86, Optical communications, 2013.

[17]: Structuring of liquid crystals for optical technologies, K. Sathaye, Thèse de doctorat, Telecom Bretagne, Brest, 2012.

[18]: Liquid Crystals for electro-optic applications, Handbook of advanced electronic and photonic materials and devices, S. M. Kelly et M. O'Neill, Academic Press, Vol.7, 2000.

[19]: Wavelength sensitivity in directional couplers, I. Januar, R.J. Feuestein, A. Mickelson et R. Sauer, Vol.10, N.9, Pages 1202-1209, Journal of Lightwave technology, 1992.

[20]: Polarization splitter made of a polymer waveguide coupler with localized anisotropic segments, O. castany, S.Abbas, I. Hardy, M. Gadonna et L. Dupont, Vol.25, N.5, Pages 468-471, IEEE Photonics Technology Letters, 2013.

Chapitre 3 : Suspensions de nanoparticules de Goethite

III.1.Introduction

Les suspensions Minérales qui forment une classe distincte de cristaux liquides lyotropiques, ont récemment fait l'objet d'un regain d'intérêt en raison de propriétés qui combine et fluidité et anisotropie [1]. Dans ce chapitre, nous allons présenter un cristal liquide nématique minéral lyotrope sous sa forme isotrope qui est constitué d'une suspension de nanoparticules, sous forme filaire, de goethite (α -FeOOH), en commençant par décrire leur structure cristallographique, suivi par les propriétés optiques et électriques et enfin nous terminerons par le choix du solvant et son impact sur les propriétés électro-optiques.

III.2. Structure cristallographique des nanoparticules d'argile

Parmi les nanoparticules minérales utilisées comme cristaux liquides lyotropiques, on distingue les argiles phyllosilicates (feuillets de silicates) telle que la beidellite et la nontronite, mais aussi les oxyhydroxyde de Fer comme la Goethite. Dans ce qui va suivre nous allons décrire la cristallographie de ces deux familles en se concentrant sur la beidellite et la goethite.

III.2.1. Nanoparticules de Goethite

La Goethite (α -FeOOH) est l'une des phases les plus connues et les plus réactives des oxydes des Fer dans les sols et les sédiments [2] et c'est l'une des formes thermodynamiquement les plus stable des oxydes de fer [3]. La Goethite possède une structure hexagonale compacte formée par les anions O^{2-} et OH^- avec des cations de Fe^{3+} au centre de chaque Octaèdre [3]. Comme illustré dans la figure 1. Deux octaèdres composent la double chaîne octaédrique. Ces doubles chaînes sont reliées aux d'autres chaînes adjacentes par le partage de bord entre une chaîne et les groupes OH qui sont liés à un autre atome d'oxygène dans une chaîne diagonalement opposé. Les nanoparticules de Goethite ont la forme de nano barre avec une forte dispersion dimensionnelle d'environ 150 nm de longueur, 25 nm de largeur et une épaisseur de 10 nm [4] comme illustré par la figure 2. Les suspensions aqueuses de nanoparticules de goethite peuvent être facilement obtenues par l'augmentation du pH d'une solution aqueuse de $Fe(NO_3)_3$. Le précipité résultant est vieilli à température ambiante, centrifugé et rincé à plusieurs reprises et enfin dispersé à pH 3. A ce pH, qui représente un compromis entre les stabilités chimique et colloïdale, en raison de la grande densité de charge de surface ($0.2C\ m^{-2}$), les interactions électrostatiques empêchent la floculation [4].

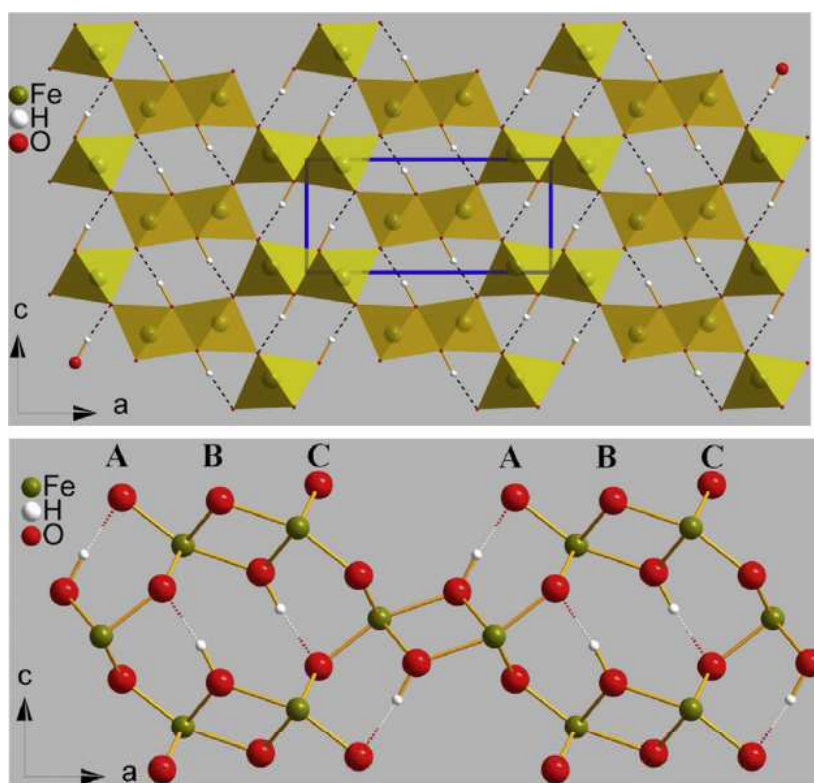


Figure 1. Structure polyédrique de la goethite (en haut) avec la maille élémentaire (cadre bleu) qui est représentée par l'image au-dessous [3].

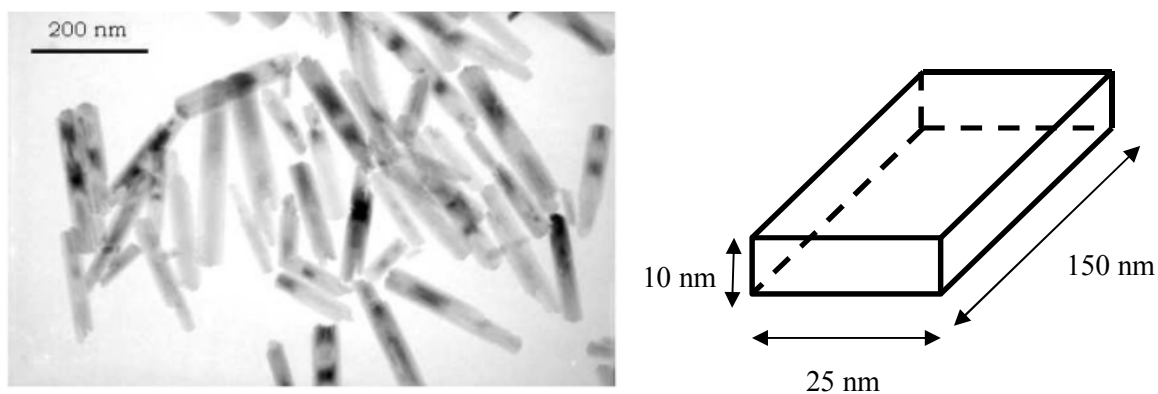


Figure 2. A gauche : Cliché microscope électronique de nanoparticules de goethite [5]. A droite : dimensions moyennes de nanoparticules de goethite [4].

III.2.2. Nanoparticules de Beidellite

La beidellite est une argile minérale naturelle de groupe smictite, elle a une structure phyllosilicate 2 : 1 (des feuilles à base de silicates de type TOT) avec une charge totale négative [6]. Sa composition chimique est $(\text{Si}_{7.27}\text{Al}_{0.73})(\text{Al}_{3.77}\text{Fe}^{3+}_{0.11}\text{Mg}_{0.21})\text{O}_{20}(\text{OH})_4\text{Na}_{0.67}, n\text{H}_2\text{O}$ [7]. Où une large gamme de cations peuvent occuper des positions tétraédrique (T), octaédrique (O) et aussi des positions inter-couches. Si^{4+} , Al^{3+} et Fe^{3+} sont généralement trouvés dans les sites tétraédriques, alors que Al^{3+} , Fe^{3+} , Fe^{2+} , Mg^{2+} , Ni^{2+} , Zn^{2+} et Li^+ généralement occupent les sites octaédriques [8], comme illustré par la figure 3. Les nanoparticules de beidellite se présentent sous forme de disques fins irréguliers dont le diamètre moyen est de 209 nm avec une assez grande polydispersité et une épaisseur de 0.7 nm [7].

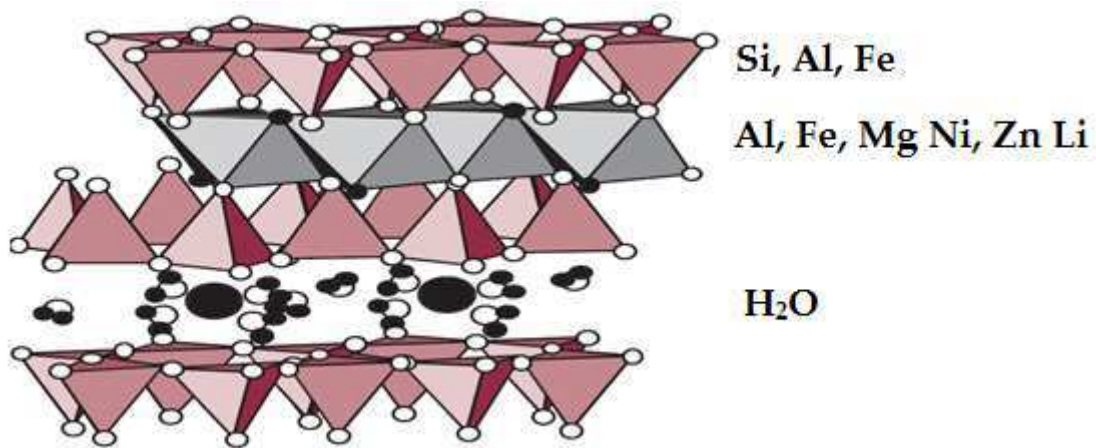


Figure 3 : Structure Polyédrique de la beidellite

III.3. Stabilité colloïdale des suspensions de goethite

Afin d'assurer une bonne stabilité de la suspension et d'éviter la floculation, il faut que la répulsion électrostatique soit aussi grande que possible. En effet la stabilité et la dispersion des suspensions dans le temps sont conditionnées par l'équilibre entre les forces d'attraction de type Van der Waals et les forces électrostatiques répulsives [9]. Ces forces électrostatiques sont caractérisées par le potentiel électrostatique des particules dans la solution. Ce potentiel est appelé communément *potentiel Zêta* et noté ζ . Il est la conséquence de l'apparition de deux couches de charges électriques qui se forment autour de chaque particule (voir la figure 4) :

- La première couche, appelée *couche de Stern*, est constituée de la région la plus proche de la surface de la particule et englobe des ions qui sont fortement liés à celle-ci.

- La seconde couche, quant à elle est nommée couche de *Gouy-Chapman*, est constituée d'un nuage ionique, lié aussi à la particule, déterminée par les forces électriques mais aussi par les mouvements thermiques aléatoires [9].

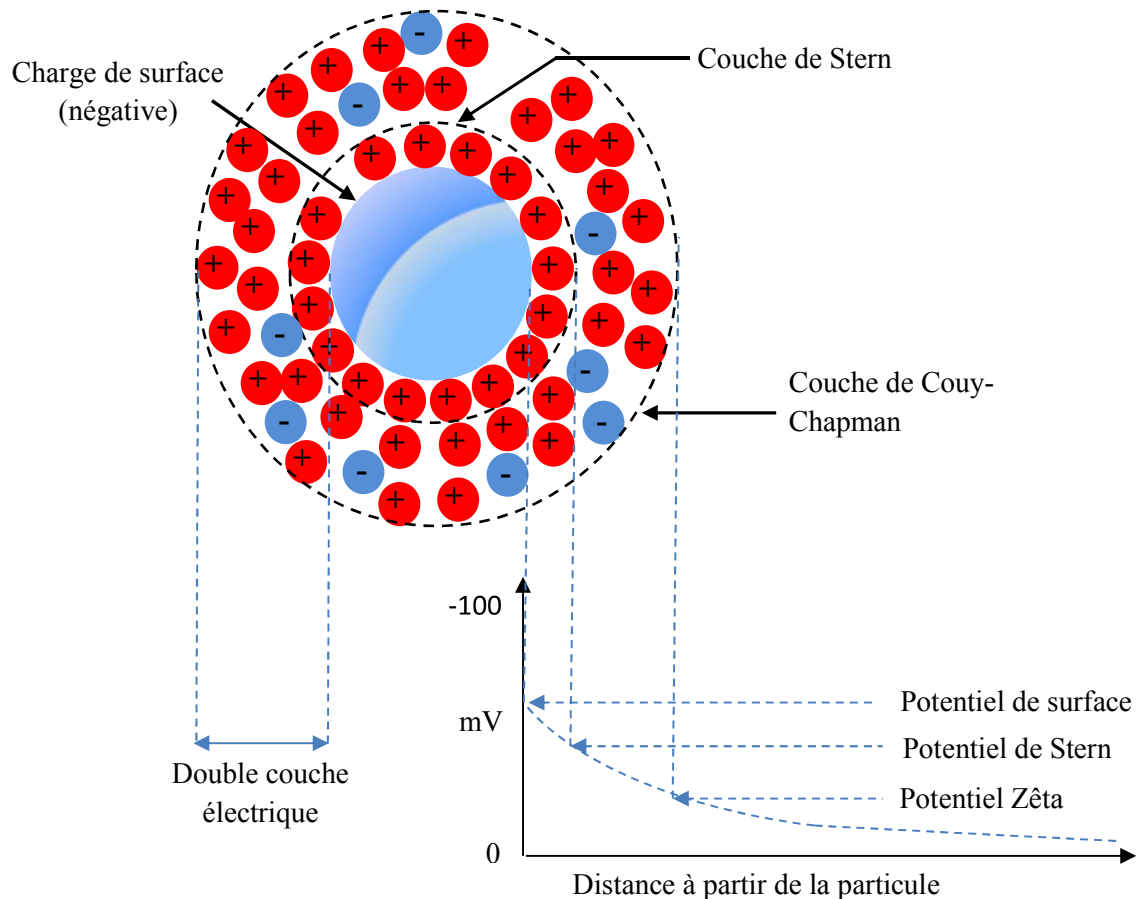


Figure 4. Schéma définissant la double couche électrique et le potentiel Zêta.

Le potentiel zêta influence directement la stabilité de la suspension. Plus il est élevé (en valeur absolue), plus la suspension est stable grâce à la répulsion entre les particules [9]. A ne pas confondre avec la charge de surface de la particule, qui est due essentiellement à l'ionisation de groupes chimiques à la surface et aussi qu'à l'adsorption de surfactants ioniques. Donc pour avoir un système plus stable, il faudrait que la charge de surface soit la plus élevée et la force ionique soit la plus faible que possible. Ces deux paramètres, qui dépendent du pH, doivent être connus afin d'accéder à une description raisonnable des propriétés thermodynamiques des suspensions. Des travaux ont été faits afin de comprendre l'impact du pH, des dimensions ainsi que la concentration de l'électrolyte sur la

densité de charge de surface des nanoparticules de goethite sphérique [10]. Dans le cas des nanoparticules de Goethite et à faible pH, les groupes hydroxyles – OH adsorbent des protons pour former des groupes aquo – OH_2^+ , alors qu'à pH élevé, d'autres groupes – OH perdent des protons pour former des groupes oxo – O^- , c'est pour cela que généralement les nanoparticules sont chargées positivement à faible pH et négativement à un pH élevé [1, 10]. A titre d'exemple, Lemaire et al [1] ont obtenu une densité de charge de surface d'environ $0.2 \text{ C} \cdot \text{m}^{-2}$ pour un pH autour de 3. Selon le même auteur, on ne peut pas descendre le pH en-dessous de 3 car les nanoparticules de goethite seront dissoutes dans des conditions trop acides.

III.4. Propriétés électro-optiques de la goethite

Les suspensions aqueuses de Goethite peuvent former différentes phases dont la phase nématique. Mais avant de s'intéresser aux propriétés optiques de ces suspensions, nous allons d'abord présenter les différentes phases nématique et isotrope en fonction de la concentration. Lemaire dans sa thèse [5] s'est intéressé à la transition isotrope – nématique des suspensions de goethite ayant les dimensions moyennes citées dans la figure 2. D'après ses mesures, la phase isotrope est obtenue avec une concentration volumique de nanoparticules dans l'électrolyte à 5.5% alors que la phase nématique équivaut à une concentration de 8.5%. Il a aussi montré l'existence d'un état intermédiaire, où les deux phases coexistent, pour une concentration, appelée *fuseau diphasique*, comprise entre les deux valeurs précédentes. De plus, il a démontré le caractère athermal des suspensions, en mesurant la proportion nématique, dans des capillaires, qui passe de 70% à 20°C à 65% à 80°C. Cette faible variation des proportions pour une variation de température relativement élevée (60°C) permet de dire que le système est quasiment athermal [5]. Ces observations sont schématisées par la figure 5.

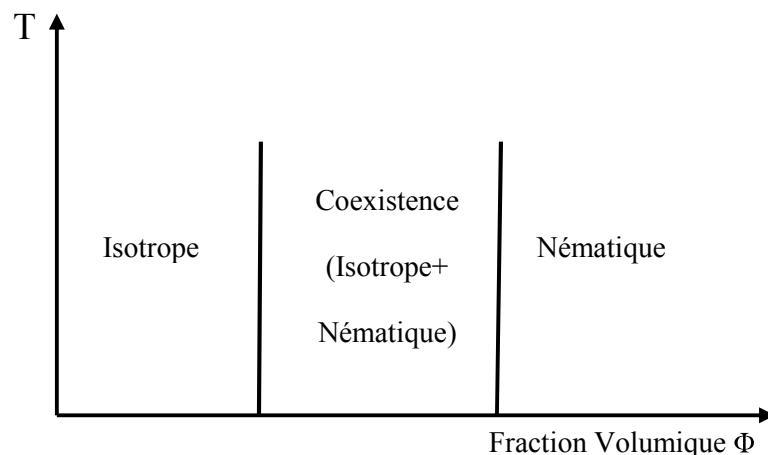


Figure 5. Diagramme de phases schématisé des suspensions de goethite [5].

Dans la littérature, on trouve beaucoup de travaux concernant les propriétés magnéto-optiques des suspensions de goethite, mais peu sur leurs propriétés électro-optiques. Ceci est dû aux différentes difficultés expérimentales comme l'isolation des électrodes électriques pour éviter l'électrolyse [5].

En collaborant avec Ivan Dozov et grâce à son expérience dans la physique des suspensions aqueuses [11,12], nous avons pu comprendre le comportement électro-optique des suspensions aqueuses des nanoparticules de Goethite. Ces nanoparticules sont très anisométriques, avec un rapport axial $R=L/D$ typique de l'ordre de 10, toutes leurs propriétés sont fortement anisotropes. C'est le cas de leurs propriétés électriques tels que le moment dipolaire permanent et la polarisabilité de la particule. Pour cette raison, sous l'effet d'un champ électrique externe \mathbf{E} , l'énergie d'interaction entre la particule et ce champ devient fonction de son orientation. Si on modélise la particule par une sphéroïde avec un axe long (qui est aussi un axe de symétrie rotationnelle) et des axes courts D , l'énergie totale de la particule, notée $U^P(\theta)$ est fonction de l'angle θ entre l'axe long L de la sphéroïde et le champ \mathbf{E} (Figure 6). Alors le paramètre d'ordre induit par le champ dans la suspension est donné par :

$$S(E) = \frac{1}{2} \langle 3\cos^2\theta - 1 \rangle = \frac{1}{2} \int_0^1 f(\theta)(3\cos^2\theta - 1)d\cos\theta \quad (\text{III.1})$$

Avec

$$f(\theta) = \exp(-U^P(\theta)/kT) / \int_0^1 [\exp(-U^P(\theta)/kT)] d\cos\theta \quad (\text{III.2})$$

Où $f(\theta)$ est la fonction de distribution orientationnelle des particules, k la constante de Boltzmann et T la température.

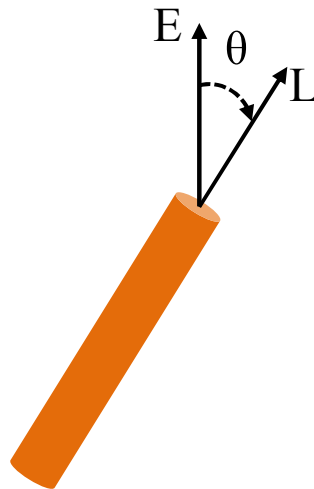


Figure 6 : Définition de l'angle θ entre le champ électrique \mathbf{E} et l'axe de symétrie L de la particule.

Toutes les propriétés macroscopiques de la suspension colloïdale sont des moyennes pondérées des propriétés des particules individuelles. Quand il s'agit des propriétés décrites par des tenseurs de rang 2, comme pour la majorité des propriétés physiques, il n'est pas nécessaire de connaître la forme exacte de la fonction de distribution, mais seulement la valeur de $S(E)$. Par exemple, pour des suspensions colloïdales diluées la biréfringence induite vaut approximativement :

$$\Delta n(E) = \Delta n^P \phi S(E) \quad (\text{III.3})$$

Où ϕ est la fraction volumique des particules et Δn^P est la biréfringence spécifique extrapolée à $\phi = 1$ et pour un système parfaitement orienté ($S = 1$).

Des formules similaires sont obtenues pour le dichroïsme de la lumière. Cette anisotropie d'absorption est décrite par un tenseur de second ordre, \mathbf{A} , avec des valeurs propres $A_{||}$ et A_{\perp} , approximativement définit par :

$$A_{iso} = \frac{1}{3}(A_{||} + 2 A_{\perp}) = \frac{1}{3}(k_{||} + 2k_{\perp}) \phi d \quad (\text{III.4})$$

$$\Delta A = (A_{||} - A_{\perp}) = (k_{||} - k_{\perp}) S \phi d \quad (\text{III.5})$$

Avec d est la longueur du chemin optique dans le milieu absorbant, $k_{||}$ et k_{\perp} sont les absorbances spécifiques des particules pour la polarisation de la lumière respectivement parallèle et perpendiculaire de l'axe long L de la particule, $A_{||}$ et A_{\perp} sont les absorptions de la suspension pour la polarisation de la lumière respectivement parallèle et perpendiculaire du champ électrique appliqué \mathbf{E} . A_{iso} et ΔA sont la partie isotrope et l'anisotropie du tenseur \mathbf{A} . Le rapport dichroïque $R_A(E)$ de la suspension, dont sa valeur est comprise entre 0 et 1, est donné par la relation suivante :

$$R_A(E) = \frac{A_{||} - A_{\perp}}{A_{||} + 2 A_{\perp}} = \frac{k_{||} - k_{\perp}}{k_{||} + 2k_{\perp}} S(E) = R_A^P S(E) \quad (\text{III.6})$$

Avec $R_A^P = \frac{k_{||} - k_{\perp}}{k_{||} + 2k_{\perp}} = R_A(E = \infty)$ qui est le rapport dichroïque spécifique de la particule, égal à la valeur saturée de $R_A(E)$ pour un champ infiniment fort.

Dans les deux cas de mesures (biréfringence ou dichroïsme) les valeurs mesurées dépendent seulement du champ électrique à travers $S(E)$. En principe les deux mesures fournissent la même information sur l'alignement des particules sous l'effet du champ. Cependant, en pratique, selon les matériaux utilisés et l'architecture de la cellule de test, l'une ou l'autre technique peut être la mieux adaptée pour mesurer l'anisotropie induite par le champ électrique. Dans le cas d'une cellule

« capillaire », le champ électrique (ainsi que l'axe optique induit dans la suspension) est perpendiculaire à l'axe de la propagation de la lumière (et d'observation). Dans cette géométrie, la mesure de la biréfringence $\Delta n(E) = n_e(E) - n_o(E)$, obtenue entre deux polariseurs: plusieurs extrema sont possibles, est plus facile et directe que celle du rapport dichroïque ($R_A(E)$ qui nécessite deux mesures séparées des absorptions $A_{||}$ et A_{\perp}). Cette mesure est aussi très sensible et précise, permettant de mesurer de faibles biréfringences et de travailler à des champs faibles ou modérés. Par contre, dans le cas d'une cellule plate, de type « sandwich » le champ électrique est appliqué le long de l'axe d'observation, rendant la mesure directe de $\Delta n(E)$ impossible car l'indice extraordinaire est inaccessible dans cette géométrie. Par contre, la technique dichroïque est très bien adaptée dans ce cas, malgré que là aussi la mesure avec une des polarisation, $A_{||}(E)$, est impossible. Cependant, la mesure avec l'autre polarisation, $A_{\perp}(E)$, en fonction du champ est suffisante pour obtenir l'ordre induit $S(E)$. A cet effet, il faut connaître le rapport dichroïque spécifique des particules R_A^P , qui est une caractéristique du matériau mesurable dans d'autres géométries. En tenant compte que la partie isotrope de l'absorption est indépendante du champ, $A_{iso}(E) = A_{iso}(0)$, et de l'identité $A_{\perp}(0) = A_{||}(0) = A_{iso}(0)$ (due au fait que sans champ la suspension est dans la phase isotrope), nous obtenons :

$$\frac{A_{\perp}(0) - A_{\perp}(E)}{A_{\perp}(0)} = R_A^P S(E) \quad (III.7)$$

Donc une simple mesure de l'absorption $A_{\perp}(E)$ est suffisante pour obtenir le paramètre d'ordre induit et donc toutes les autres propriétés anisotropes induites par le champ électrique.

Mécanisme physique de la réorientation des particules sous le champ

L'énergie de la particule sous champ électrique E , $U^p(q)$, dépend de l'orientation de la particule par rapport au champ, de l'anisotropie de ses propriétés électriques (moment dipolaire permanent μ , tenseur diélectrique ϵ_p , conductivité volumique σ_p), des propriétés électriques de l'électrolyte (constante diélectrique ϵ_e , conductivité volumique σ_e) et des phénomènes électriques à proximité de l'interface des deux milieux (dont le plus important est la polarisation du nuage dense de contre-ions autour de la particule, résultant en une forte conductivité équivalente de surface, σ_{eq}). Trois mécanismes importants contribuent à l'énergie $U^p(q)$:

- 1) **Mécanisme électrostatique** (ce mécanisme est important quand la particule et le solvant sont des bons isolants):

Le champ appliqué E réoriente le dipôle permanent μ de la particule, résultant en $\mu \parallel E$. C'est un effet linéaire en champ et quand un champ alternatif de basse fréquence est appliqué, à chaque demi-période la particule va se retourner à 180° suivant l'opposition du signe du champ. Si la fréquence du

champ, ν , est grande par rapport à la fréquence $1/D^{\text{rot}}$ qui caractérise la diffusion rotationnelle de la particule dans le solvant, la particule n'arrive plus à suivre l'inversion du champ et la contribution de cet effet est négligeable : sa moyenne dans le temps est nulle. C'est le cas pour les fréquences dont nous travaillons, $\nu > 10$ kHz, et le moment permanent ne joue aucun rôle dans notre cas.

Un autre effet électrostatique est dû au couplage du champ avec le tenseur diélectrique (dipôles induits). Cette contribution est quadratique en champ et la particule est orientée de la même façon pendant les deux demi-périodes du champ alternatif. Pour cette raison il n'y a pas de la relaxation rotationnelle dans ce cas et cette contribution subsiste jusqu'aux très hautes fréquences (comparables aux fréquences optiques). En première approximation on peut considérer la particule comme un sphéroïde diélectrique avec des axes L et D et volume $V^p = (\pi/6) LD^2$ et avec une constante diélectrique isotrope ϵ_p . Le moment dipolaire total induit par le champ dans une particule est :

$$P_k = \epsilon_0 V^p \frac{\epsilon_e(\epsilon_p - 1)}{\epsilon_e + (\epsilon_p - \epsilon_e)N_k}; k = (||, \perp) \quad (\text{III.8})$$

ou $N_{||}$ et N_{\perp} sont les facteurs de dépolarisation, fonctions du rapport axial L/D (pour la goethite $L/D \approx 10, N_{||} \approx 0.06, N_{\perp} \approx 0.47$). Tenant compte de l'interaction du dipôle induit P avec le champ et avec le milieu autour la particule, l'énergie électrique devient :

$$U^P(\theta) = -\frac{1}{2} \frac{\epsilon_p - \epsilon_e}{\epsilon_p - 1} \mathbf{E} \cdot \mathbf{P} = \text{conste} - \frac{1}{2} \mathbf{E} \cdot \boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{E} \quad (\text{III.9})$$

Où le sens physique du tenseur α est l'excès de polarisabilité de la particule par rapport au solvant et qui est donné par :

$$\alpha_k = \epsilon_0 V^p \frac{\epsilon_e(\epsilon_p - \epsilon_e)}{\epsilon_e + (\epsilon_p - \epsilon_e)N_k}; k = (||, \perp) \quad (\text{III.10})$$

Finalement, on obtient pour l'énergie électrique

$$U^P(\theta) = \text{const.} - \frac{1}{2} \Delta\alpha \mathbf{E}^2 \cos^2 \theta$$

$$U^P(\theta) = \text{const} - \frac{1}{2} \Delta\alpha \mathbf{E}^2 \cos^2 \theta \quad (\text{III.11})$$

Où $\Delta\alpha$ est l'anisotropie du tenseur α . Pour des particules très grandes et très anisotropes, dispersées dans un solvant avec une permittivité élevée ϵ_e (comme l'eau), cette énergie peut être considérable, mais elle reste quand même petite par rapport aux contributions des autres mécanismes et, en général, peut être négligée.

2) Mécanisme de Maxwell - Wagner (MW) ; ce mécanisme est important quand la particule et/ou le solvant sont des conducteurs:

La contribution diélectrique, décrite plus haut, est due à la polarisation de la particule, i.e. de l'accumulation de charges induites (charges liées) à l'interface, qui proviennent du contraste diélectrique entre les deux milieux. Si au moins un des milieux est conducteur, un phénomène similaire apparaît à cause du contraste des conductivités des deux milieux. Cette fois-ci sont des charges libres (charges de conduction) qui sont accumulées à l'interface, polarisant la particule et contribuant ainsi à l'énergie électrique.

Cette contribution peut être calculée de la même façon que dans le cas diélectrique, mais introduisant des constantes diélectriques complexes pour les deux milieux, $\varepsilon_e^* = \varepsilon_e - j\sigma_e/(\varepsilon_0\omega)$ et $\varepsilon_p^* = \varepsilon_p - j\sigma_p/(\varepsilon_0\omega)$ et. La polarisabilité équivalente devient

$$\alpha_k = -\varepsilon_0 V^P \left(\varepsilon_e^* \frac{\varepsilon_e^* - \varepsilon_p^*}{\varepsilon_e^* + (\varepsilon_p^* - \varepsilon_e^*) N_k} \right) ; k = (||, \perp) \quad (\text{III.12})$$

Les expressions des valeurs propres de α ont la forme

$$\alpha_k = \alpha_k^\infty + \frac{\alpha_k^0 - \alpha_k^\infty}{1 + (\nu/\nu_k^{MW})^2} ; k = (||, \perp) \quad (\text{III.13})$$

ou ν_k^{MW} ; $k = (||, \perp)$, sont les fréquences de relaxation de l'effet MW, comparables à la fréquence de relaxation des charges dans l'électrolyte, $\nu_c = \sigma_e/(2\pi\varepsilon_0\varepsilon_e)$, et α_k^0 and α_k^∞ sont respectivement les asymptotes de α_k à très basses ($\nu \ll \nu_k^{MW}$) et très hautes fréquences ($\nu \gg \nu_k^{MW}$). Naturellement, α_k^∞ sont égales aux valeurs obtenues avec le model diélectrique, parce que à ces hautes fréquences les charges ne peuvent plus suivre l'inversion du signe du champ et les conductivités ne jouent aucun rôle. Quand le contraste des conductivités des deux milieux est élevé, les valeurs des α_k^0 sont très grandes, $\alpha_k^0 \gg \alpha_k^\infty$, i. e. l'effet MW est beaucoup plus important que l'effet diélectrique. Néanmoins, pour nos études l'effet MW peut être négligé, à cause de nos conditions de mesure. En effet, dans toutes les géométries de cellule qu'on utilise il y a une couche isolante entre les électrodes et l'électrolyte, qui nous oblige à travailler à haute fréquence, $\nu \gg \nu_c \sim \nu_k^{MW}$ pour minimiser l'écrantage du champ. En d'autres termes, l'écrantage et l'effet de Maxwell-Wagner ont les mêmes origines physiques : ils sont dus à l'accumulation de charges mobiles respectivement à l'interface couche isolante/électrolyte et aux interfaces particule/électrolyte. Dans les deux cas la fréquence de relaxation est définie par la conductivité volumique de l'électrolyte, et donc il est difficile de séparer ces effets (sauf dans le cas

d'un contact direct des électrodes avec le solvant, qui est très défavorable pour nos fins à cause des fortes dégradations des cellules).

3) Mécanisme de Maxwell – Wagner – O’Konski (MWO) ; ce mécanisme intervient quand les surfaces des particules sont chargées et le solvant est conducteur:

Très souvent les suspensions colloïdales sont stabilisées électrostatiquement par les charges de surface sur les particules dues au fort pouvoir dissociant du solvant (d’habitude de l’eau). Les charges sur la particule sont, dans la plupart des cas, fixes et la conductivité volumique des particules est nulle ou faible. Par contre, les charges dans le nuage de contre-ions, entourant la particule, sont mobiles. Sous l’action du champ appliqué ces charges se déplacent et le nuage ionique se polarise. Si la densité de charge de surface est grande, le nombre de charges mobiles autour de la particule est important aussi et le moment dipolaire induit dû au déplacement des contre-ions peut devenir énorme.

Il y a soixante ans, O’Konski a démontré [13] que cet effet est souvent dominant dans les dispersions colloïdales et a proposé une méthode très élégante pour en tenir compte. En raison de la grande densité des ions à proximité de l’interface, avec une mobilité comparable à la mobilité dans le volume loin des particules, implique une conductivité locale très grande par rapport à la conductivité volumique de l’électrolyte. De plus, les contre-ions ne peuvent pas s’éloigner de l’interface en raison de l’attraction exercée par les charges de la surface. Cela permet de considérer, en première Approximation, la conductivité due aux contre-ions comme une conductivité de surface de la particule, σ^S . Cette conductivité supplémentaire renormalise la conductivité volumique de la particule, résultant en une conductivité volumique équivalente (c’est la conductivité volumique d’une particule imaginaire avec la même forme et dimensions, qui aurait les mêmes propriétés électriques que la particule réelle) :

$$\sigma_k^{eq} = \sigma_p + \frac{\sigma^S}{\xi_k}; k = (||, \perp) \quad (III.14)$$

Où ξ_k est une longueur anisotrope effective, qui est fonction de la forme et des dimensions de la particule. Approximativement, pour un bâtonnet cylindrique [13] :

$$\xi_{||} = \frac{D}{4}; \quad \xi_{\perp} = \frac{LD}{2(L+D)}$$

La polarisabilité de la particule (et donc son énergie électrique) est obtenue en remplaçant σ_p dans les expressions MW par la conductivité volumique équivalente calculée. Qualitativement, le comportement électro-optique de la suspension dépend fortement du rapport entre σ_k^{eq} et σ_e . Si $\sigma_k^{eq} \ll \sigma_e$, la conductivité équivalente de la particule est négligeable par rapport à la conductivité volumique de l’électrolyte et la suspension se comporte comme une dispersion de particules isolantes dans un solvant bon conducteur (dans les expressions de MW il faut substituer $\sigma_p = 0$ dans ce cas). Les fréquences de relaxation restent les mêmes que dans le cas classique de MW, i. e. comparables à la

fréquence de relaxation des charges dans l'électrolyte, $\nu_k^{MWO} \approx \nu_k^{MW} \gg \nu_c$. Comme déjà expliqué, avec nos techniques de mesures le signal électro-optique sera faible dans ce cas, à cause de l'écrantage inévitable du champ à basse fréquence.

Par contre, si $\sigma_k^{eq} \gg \sigma_e$, la suspension se comporte qualitativement comme des particules conductrices (voire métalliques) dispersées dans un liquide isolant (dans les expressions de MW il faut substituer $\sigma_e = 0$ dans ce cas). Les fréquences de relaxation, ν_k^{MWO} augmentent par rapport au cas classique de MW, i. e. deviennent grandes par rapport à la fréquence de relaxation des charges dans l'électrolyte, $\nu_k^{MWO} \gg \nu_c$.

Cette analyse qualitative va nous guider dans l'optimisation des matériaux colloïdaux et de l'architecture des cellules, afin d'obtenir la biréfringence induite la plus forte, à des fréquences les plus basses possibles. Les conditions principales pour atteindre cet objectif sont :

- i) Des particules très anisotropes, avec une large valeur de la biréfringence spécifique, et des suspensions qui restent dans la phase isotrope à des fractions volumiques élevées. Ces conditions assurent une valeur élevée de la biréfringence saturée (l'asymptote de la biréfringence à champ fort).
- ii) Une dispersion colloïdale avec une forte densité de charge à la surface des particules. Cette condition assure un dense nuage de contre-ions et une forte polarisabilité des particules par le mécanisme MWO. D'habitude, un solvant polaire et à fort pouvoir dissociant est nécessaire pour satisfaire cette condition (à un pH, ou pK, adaptée pour dissociation optimale des charges à l'interface de la particule).
- iii) Un solvant avec une conductivité volumique la plus basse possible, pour diminuer la fréquence de relaxation des charges dans l'électrolyte, ν_c . Ceci permettra de travailler à des fréquences plus basses, avec une plus faible consommation d'énergie et moins de chauffage par l'effet Joule. Cette condition est difficilement compatible avec la condition ii) : d'habitude les solvants à fort pouvoir dissociant (l'eau par exemple) ont aussi une conductivité volumique non négligeable. Néanmoins, il est possible d'obtenir un compromis en variant les solvants et la force ionique des suspensions.

Quand ces trois conditions sont satisfaites, on s'attend qualitativement à une variation du signal électro-optique en fonction de la fréquence du champ appliqué et à tension constante. A basse fréquence, $\nu \ll \nu_c$, la pénétration du champ dans l'électrolyte est très faible à cause des grandes pertes d'écrantage. La réponse électro-optique, due à tous les trois mécanismes : diélectrique, MW et MWO, est faible et elle croît avec la fréquence appliquée ν . Dans la région $\nu > \nu_c$ l'écrantage est inexistant et le champ pénètre de mieux en mieux dans l'électrolyte et à $\nu \gg \nu_c$ le signal électro-optique sature à sa valeur maximale, correspondante à la pénétration complète du champ dans l'échantillon. L'effet de Maxwell-Wagner a relaxé à ces fréquences et la réponse électro-optique est due aux effets

diélectriques et MWO seulement, dont le second est prépondérant. Finalement, quand la fréquence devient comparable à ν_k^{MWO} , l'effet MWO relaxe aussi et seulement le faible effet diélectrique contribue à l'énergie électrique de la particule à $\nu \gg \nu_k^{MWO}$.

III.5. propriétés électriques de la goethite

Dans cette partie nous nous sommes intéressés aux propriétés électriques de ces suspensions de nanoparticules par l'étude de leurs comportements en présence d'un champ électrique. Le premier point est consacré à la modélisation électrique des cellules utilisées afin de déterminer la plage de fréquences de fonctionnement, tandis que le second est dédié aux différents effets électrocinétiques.

III.5.1 Modèle électrique

La cellule peut être étudiée comme un circuit équivalent simplifié, représenté dans la figure 7, contenant une capacité C_S qui est liée à la polarisabilité diélectrique de la solution (solvant + nanoparticules). Avec une résistance R_S , modélisée en parallèle à C_S , qui décrit le mouvement des charges libres contenues dans la suspension et enfin une capacité notée C_I qui représente les couches isolantes, sensées posséder une résistance infinie.

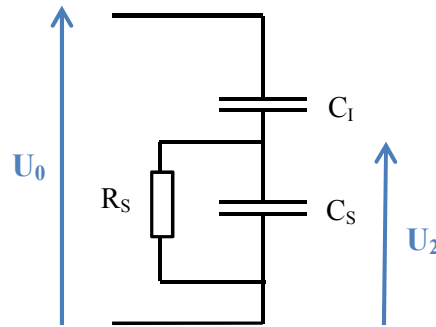


Figure 7. Schéma électrique équivalent des cellules contenant les suspensions de goethite.

En appliquant une tension alternative, aux bornes de la cellule, de forme $U_0 \cdot e^{j\omega t}$, on obtient une tension effective appliquée à la suspension U_2 qui vaut :

$$U_2 = \frac{j R_S C_I \omega}{1 + j R_S (C_S + C_I) \omega} U_0 e^{j\omega t} \quad (\text{III.15})$$

Où $\omega = 2\pi f$ avec f la fréquence du signal électrique appliqué.

A partir de la relation (III.15), on constate que la cellule possède un comportement électrique d'un filtre passe haut, ce qui signifie que la tension appliquée aux bords de la solution augmente avec l'augmentation de la fréquence jusqu'à la fréquence de coupure f_c qui est donné par la relation suivante :

$$f_c = \frac{1}{2\pi R_S(C_I + C_S)} \quad (\text{III.16})$$

Afin d'utiliser l'effet électro-optique du matériau de façon optimale, il faut que la fréquence de la tension de commande soit proche de la fréquence de coupure décrite par la relation (III.16). De plus, il faut tenir compte du processus de relaxation du nuage ionique entourant les nanoparticules. La fréquence de coupure f_e relative au processus de réorientation des nanoparticules de goethite est supérieure à quelques MHz. Donc pour un meilleur fonctionnement, il faudrait que la fréquence de l'adressage électrique soit comprise entre ces deux fréquences de coupure. Autrement dit, il faut qu'elle soit supérieure à la fréquence f_c pour permettre une tension effective optimale et inférieure à f_e pour permettre la réorientation des nanoparticules. Un des inconvénients majeurs de ce genre de suspensions est la conductivité électrique, qui fait augmenter la température de la solution par effet Joule qui se traduit par l'apparition de dérives thermiques. Cette puissance thermique est donnée par la relation suivante :

$$P_{\text{Joule}} = \frac{1}{2} \text{Re} (U \cdot I) = \frac{R_S C_I^2 \omega^2}{1 + \omega^2 R_S^2 (C_I + C_S)^2} U_0^2 \quad (\text{III.17})$$

A partir de la relation (III.17), on observe une augmentation de cette puissance thermique en fonction de la fréquence. Au-delà de la fréquence de coupure f_c , cette même relation peut s'écrire sous la forme suivante :

$$P_{\text{Joule}} = \frac{1}{2} \text{Re} (U \cdot I) = \frac{C_I^2 U_0^2}{R_S (C_I + C_S)^2} \quad (\text{III.18})$$

Antonova et al. [11] ont étudié la pénétration du champ électrique en fonction de la fréquence en tenant en compte de la fréquence de relaxation des charges, qu'on va noter f_e et qui vaut $f_e = \sigma_e / (2\pi\epsilon_0\epsilon_e)$ où σ_e et ϵ_e sont respectivement la conductivité électrique et la permittivité diélectrique de l'électrolyte [11,12]. La valeur moyenne du champ électrique dans la suspension est modélisée par :

$$E = c_d(f)c_s(f)\frac{U_0}{\sqrt{2}d} \quad (\text{III.19})$$

Où $c_d(f)$ et $c_s(f)$ sont des facteurs de correction relatifs à l'atténuation du champ dans la cellule. Le premier est dû à la différence de constantes diélectriques entre l'électrolyte et la couche isolante. Le second est causé par l'accumulation de charges à l'interface isolant/électrolyte. Les expressions de ces deux coefficients peuvent être obtenues en prenant le module de la relation (III.15) :

$$c_d(f) = \frac{c_I}{c_I + c_S} \quad (\text{III.20.a})$$

$$c_s(f) = \frac{f}{\sqrt{f^2 + f_e^2(1 - c_d(f))^2}} \quad (\text{III.20.b})$$

En raison de la conductivité de l'électrolyte, la tension appliquée U entraîne les charges mobiles vers les électrodes. Ces ions sont stoppés à l'interface de l'isolant, construisant ainsi une double couche électrique, qui fait diminuer le champ dans la solution. A de basses fréquences, les ions se déplacent en phase avec le champ électrique appliqué et les charges s'accumulent jusqu'à ce que le champ soit complètement écranté dans la majeure partie de l'électrolyte, ce qui conduit à un coefficient d'écrantage quasi nul ($c_s(f) \approx 0$) impliquant un champ électrique effectif, dans l'échantillon, négligeable. Cependant, quand la fréquence augmente vers f_e , les porteurs de charges n'arrivent pas à suivre le champ convenablement, ce qui implique un champ effectif et un écrantage partiels. Finalement, à des fréquences très supérieures comparées à la fréquence de relaxation de charges, l'accumulation de charges durant la moitié de la période du champ est négligeable et le champ électrique pénètre dans l'échantillon sans aucun écrantage ($c_s(f) \approx 1$) [11].

Aussi, la fréquence de coupure donnée par la relation (III.16) peut s'écrire en fonction de $c_d(f)$ et f_e et qui vaut $f_e \cdot (1 - c_d(f))$ appelée fréquence de relaxation effective [11]. Si $c_d(f) \approx 1$, alors le champ pénétrera dans l'échantillon à des fréquences plus faibles que f_e , permettant ainsi l'étude de suspensions avec des conductivités plus élevées.

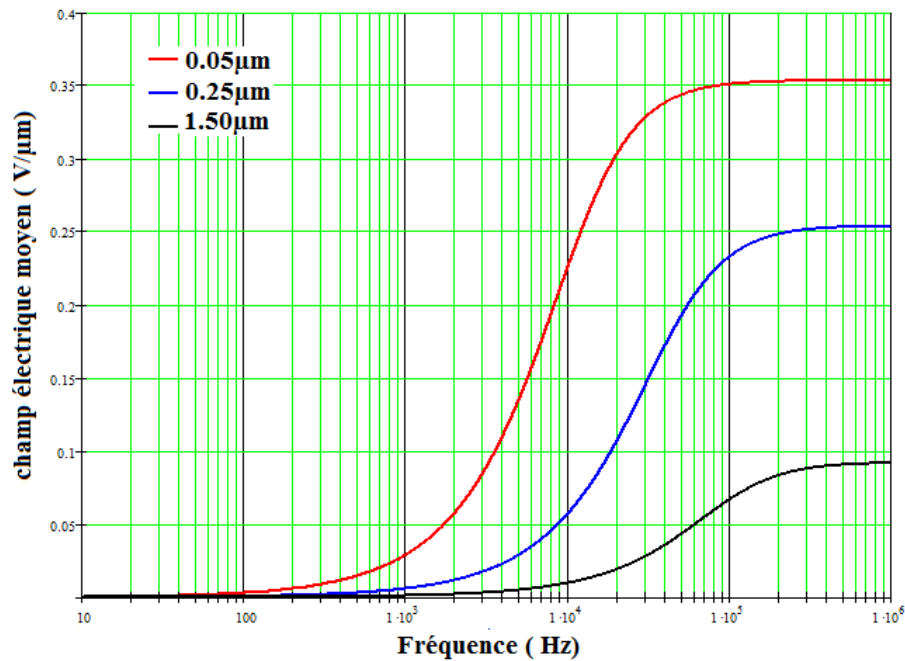


Figure 8 : Simulation de la relation (III.5) en fonction de la fréquence, pour $U_0=10$ V avec l'eau comme solution ($\epsilon_r=80$, $\sigma = 5.5 \mu\text{S/cm}$) et des couches isolantes à base de SU8 ($\epsilon_r=4.1$), les 3 couleurs représente 3 épaisseurs différentes de couches isolantes. Avec une épaisseur de la solution qui vaut $18\mu\text{m}$.

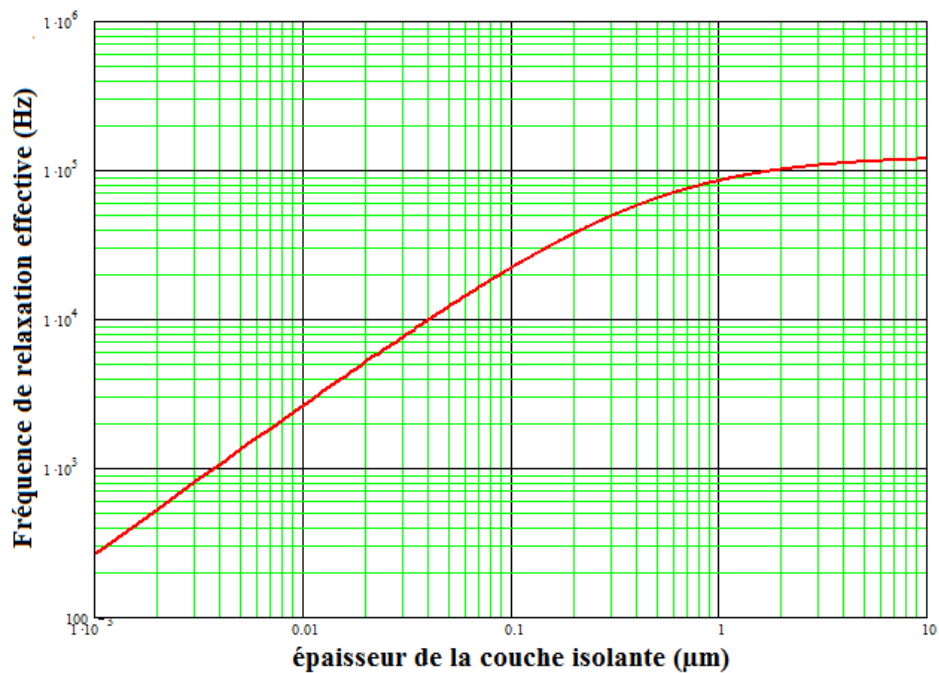


Figure 9 : Simulation de la Fréquence de relaxation effective en fonction de l'épaisseur de la couche isolante, avec l'eau comme solution ($\epsilon_r=80$, $\sigma = 5.5 \mu\text{S/cm}$) et des couches isolantes à base de SU8 ($\epsilon_r=4.1$). Avec une épaisseur de la solution qui vaut $18\mu\text{m}$.

III.5.2. Effets électrocinétiques

Les phénomènes électrocinétiques représentent les différents phénomènes physiques qui se produisent lorsque la double couche électrique entourant les particules est mise en mouvement sous l'effet d'un stimulus externe tel qu'un champ électrique, un gradient de pression ou de concentration ou même la gravité. Dans ce qui va suivre nous allons-nous intéresser qu'à seulement deux de ces phénomènes qui sont l'électrophorèse et la diélectrophorèse, qui sont le mouvement des particules l'influence d'un champ électrique [14].

III.5.2.a. Electrophorèse

Le vecteur de vitesse est relié à celui du champ électrique par la mobilité électrophorétique, qui est donné par la relation suivante :

$$\mathbf{v} = \mu \mathbf{E} \quad (\text{III. 21})$$

Avec $\mu = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r \zeta}{\eta}$

Où μ est la mobilité électrophorétique de la particule, \mathbf{v} son vecteur de vitesse, \mathbf{E} le vecteur du champ électrique appliqué, ε_0 et ε_r sont respectivement la permittivité du vide et la permittivité relative du milieu, ζ le potentiel zêta décrit par la figure 4 et η la viscosité dynamique du solvant.

Rica et al. [15] ont étudié l'impact des différents paramètres sur la mobilité électrophorétique en fonction de la fréquence du signal électrique, appelée dans ce cas la mobilité dynamique. Ils ont défini cette mobilité par la relation suivante :

$$\mu_e^i = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r \zeta}{\eta} f_1^i \cdot f_2^i \cdot f_3^i \quad (\text{III.22})$$

Où $i = (\parallel, \perp)$ représente l'orientation parallèle ou perpendiculaire à l'axe de symétrie de la particule par rapport au champ électrique, le facteur f_1 donne des informations sur les effets d'inertie de la particule engendrés par le mouvement d'oscillation, f_2 représente la polarisation de la double couche électrique et f_3 est un facteur de correction qui considère les fractions volumiques finie, c'est les interactions particules-particules. La relation finale de la mobilité dynamique est donnée par la relation suivante :

$$\mu_e = \frac{\mu_e^{\parallel} + 2\mu_e^{\perp}}{3} \quad (\text{III.23})$$

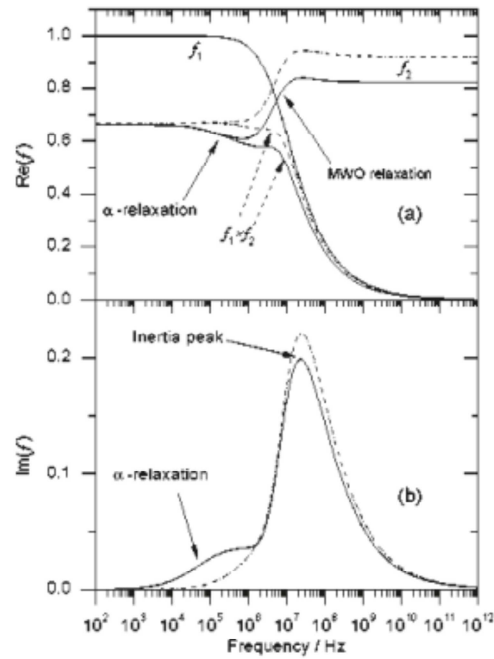


Figure 10. Evolution des facteurs f_1 et f_2 (décrits dans la relation III.22) en fonction de la fréquence [15]

La figure 10 décrit l'impact des deux facteurs f_1 et f_2 sur la mobilité dynamique des suspensions. Rica et al. [15] décrivent trois processus qui rentrent en jeu, le premier est dû au facteur f_1 qui montre un seul mécanisme de relaxation (appelée la relaxation inertielle) où la mobilité tend vers zéro au-delà d'une fréquence ω_i , qui vaut approximativement v_m/b^2 avec v_m est la viscosité cinématique du solvant et b la taille du semi axe mineur de la particule. Les mêmes auteurs expliquent cette relaxation par le fait qu'à ce niveau de fréquences, le flux électroosmotique du liquide n'a pas le temps de se développer pleinement. Les deux autres processus sont liés au facteur f_2 c'est-à-dire à la polarisation de la double couche électrique. Le premier de ces deux processus, qui se produit à de basses fréquences, est lié à la diffusion d'ions appelée mécanisme de polarisation de concentration. Ce mécanisme disparaît quand on atteint une fréquence ω_α , appelée fréquence de relaxation α , qui est donnée par D^*/b^2 avec D^* le coefficient de diffusion moyen des ions dans la solution. A des fréquences supérieures à ω_α , un autre phénomène de relaxation apparaît appelé relaxation de MWO (Maxwell-Wagner-O'Konski), qui conduit à l'augmentation de la mobilité ; ce phénomène est associé à la diminution du coefficient du dipôle car les ions n'arrivent plus à se mouvoir sur de grandes distances entre deux oscillations successives. Ce qui a pour conséquence la disparition de la polarisation de la double couche électrique qui est due à la différence de conductivité entre les particules et le milieu. Cette relaxation s'établit pour la fréquence $\omega_{MWO} = D^*/\kappa^{-2}$, avec κ est la largeur de la double couche électrique. Le produit des deux facteurs $f_1 \times f_2$ est une conséquence des trois mécanismes cités ci-dessus. Comme on l'a cité précédemment, f_3 est lié à la concentration volumique en nanoparticules, la mobilité dynamique diminue lorsque cette concentration augmente.

Cette diminution est due au ralentissement du mouvement des nanoparticules en raison de leurs interactions entre elles.

III.5.2.b. Diélectrophorèse

La diélectrophorèse (DEP) décrit la force exercée par le champ électrique non-uniforme sur une particule diélectrique [14]. La particule se trouve polarisée, sous l'effet du champ électrique, qui se comporte alors comme un dipôle. Beaucoup de paramètres influencent cette force, comme la géométrie de la particule, les propriétés diélectriques du milieu et aussi celles de la particule, ainsi que les paramètres du champ électrique (amplitude et fréquence). Généralement, ce phénomène est illustré par la force exercée sur une particule sphérique homogène, comme représenté par la figure 11.

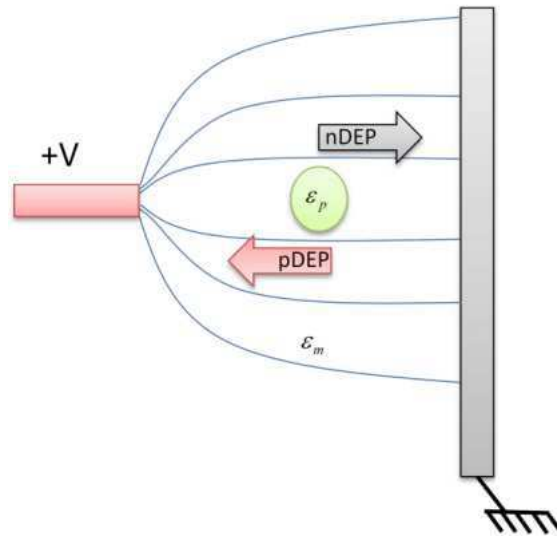


Figure 11 : Représentation schématique de la diélectrophorèse induite par un champ électrique non-uniforme, les lignes de champ sont représentées par les traits pleins [14].

La diélectrophorèse dans ce cas est donnée par la relation suivante [16] :

$$\mathbf{F}_{DEP} = 2\pi\epsilon_m r^3 \Re[K(\omega)] \nabla E^2 \quad (\text{III.24})$$

Où ϵ_m est la permittivité diélectrique du milieu et $K(\omega)$ est appelé le facteur de Clausius–Mossotti et qui vaut [11, 13] :

$$K(\omega) = \frac{\bar{\epsilon}_p - \bar{\epsilon}_m}{\bar{\epsilon}_p + 2\bar{\epsilon}_m} \quad (\text{III.25})$$

Avec $\bar{\epsilon}_p$ et $\bar{\epsilon}_m$ sont respectivement les permittivités complexes de la particule et du milieu, qui sont données globalement par $\bar{\epsilon} = \epsilon - j\frac{\sigma}{\omega}$. Dans le cas d'une particule sphérique, la partie réelle du facteur de Clausius–Mossotti, donné par la relation (III.25), est compris entre -0.5 et 1. Ce qui permet

d'avoir une force diélectrophorétique soit positive ou négative. Si cette force est négative alors les particules sont attirées vers les zones de faible gradient de champ électrique, sinon elles se déplacent vers les régions à fort gradient de champ.

Dans le cas des particules allongées comme la goethite, on peut réécrire les relations (III.24) et (III.25) en tenant compte de la géométrie de la particule en la modélisant comme une ellipsoïde tel que $l \gg b=c$, où « l » représente la longueur de la particule. En considérant que le grand axe de la particule est aligné suivant les lignes du champ électrique, on peut alors décomposer le champ en une composante parallèle et une autre orthogonale à l'axe principal de la particule. Alors les relations (III.24) et (III.25) deviendront [14] :

$$\mathbf{F}_{DEP} = \frac{2\pi\epsilon_m l b^2}{3} \Re[K(\omega)] \nabla E^2 \quad (\text{III.26})$$

$$K_{grand\ axe} = \frac{\overline{\epsilon_p} - \overline{\epsilon_m}}{\overline{\epsilon_m}} \quad (\text{III.27.a})$$

$$K_{petit\ axe} = 2 \frac{\overline{\epsilon_p} - \overline{\epsilon_m}}{\overline{\epsilon_p} + 2 \overline{\epsilon_m}} \quad (\text{III.27.b})$$

Si $\Re(K_{grand\ axe}) \gg \Re(K_{petit\ axe})$ alors la particule se déplacera le long des lignes de champs vers les régions à fort gradient. Par contre, si $\Re(K_{grand\ axe}) \approx \Re(K_{petit\ axe})$ alors elle se déplacera perpendiculairement aux lignes de champ vers les forts gradients tout en restant alignée avec les lignes de champ [14].

III.7. Conclusion

Dans ce chapitre, qui est dédié aux suspensions de nanoparticules de goethite, nous avons essayé de regrouper les différentes propriétés qui nous permettent de mieux appréhender la diversité des phénomènes qui sont mis en jeu dans la conception et la fabrication des filtres optiques accordables en se basant sur les propriétés électro-optiques de ce genre de solution. Comme on l'a vu ci-dessus, il faut tenir compte des différentes fréquences de relaxation, ce qui rend la tâche plus ardue. Le caractère électrolytique des solutions, impose la présence d'une couche isolante qui engendre une réduction du champ électrique dans la solution. De plus, cela augmente la conductivité électrique impliquant un échauffement thermique par effet joule, sans oublier les différents phénomènes électrocinétiques. Pour tout cela, nous avons essayé de travailler avec différents solvants ainsi que différentes couches isolantes. Cette étude qui concerne l'utilisation des suspensions de nanoparticules de Goethite dans la conception de filtres optiques accordables sera décrite dans le chapitre suivant.

Références

- [1]: Physical properties of aqueous suspensions of goethite (α -FeOOH) nanorods, Part I: In the isotropic phase, B. J. Lemaire, P. Davidson, J. Ferré, J.P. Jamet, D. Petrmann, P. Panine, I. Dozov et J. P. Jolivet, *The European Physical Journal E*, Vol. 13, N.3, Pages 291-308, 2004.
- [2] : Hydrated goethite (α -FeOOH) (1 0 0) interface structure: Ordered water and surface functional groups, S. K. Ghose, G. A. Waychunas, T. P. Trainor et P. J. Eng, *Goechimica et Cosmochimica Acta* 74, Pages 1943-1953, 2010.
- [3]: An overview of the role of the goethite surfaces in the environment, H. Liu, T. Chen, R. L. Frost, *Chemosphere*, Elsevier, Vol.103, Pages 1-11, 2004.
- [4]: Mineral Liquid Crystals from self-assembly of anisotropic nanosystems, J-C. B. Gabriel et P. Davidson, *Topic in Current Chemistry, Colloid Chemistry I*, Elsevier, Vol. 226, Pages 119-172, 2003.
- [5]: Etude des propriétés structurales et magnétiques d'un cristal liquide minéral, les suspensions de goethite (α -FeOOH), B. Lemaire, Thèse de doctorat, 2002.
- [6] :Advances in application of natural Clay and its composites in removal of biological, Organic, and Inorganic contaminants from drinking water, R. Srinivasan, *Advances in materials science and engineering*, Hindawi Publishing Corporation, Vol. 2011, N. 872531, Pages 1-17, 2011.
- [7]: Electric-field and magnetic-field alignment of liquid crystalline clay suspensions and clay / polymer composites, E. Plaineau, I. Dozov, K. Antonova, P. Davidson, M. Impérior, F. Meneau, I. Bihannic, C. Baravian, A. M. Philippe, P.Levitz,et L. J. Michot, *Materials science and engineering, IOP conference series*, Vol. 18, n.062005, Pages 1-6, 2011.
- [8]: Single and binary adsorption of lead and cadmium ions from aqueous solution using the clay mineral beidellite, Ö. Etcı, N Bektas, M.S. Öncel, *Enviremental earth sciences*, Vol.61, N.2, Pages 231-240, 2010.
- [9]: caractérisation et comportement de suspensions concentrées de nanoparticules sous écoulement : application aux processus d'agrégation et de rupture, M. Tourbin, Thèse de doctorat, Institut national polytechnique de Toulouse, 2006.
- [10]: Size-Dependent Surface Charging of Nanoparticles, Z. Abbas, C. Labbez, S. Nordholm et E. Ahlberg, *Journal of physical chemistry, American Chemical Society*, Vol.112, N.15, Pages 5715-5723, 2008.

[11] : Electric –Field Effects In aqueous suspensions of Beidellite Clay detected by Electro-Optical and SAXS Experiments, K. Antonova, I. Dozov, P. Davidson, E. Plaineau, C. Baravian, I. Bihannic, L. J. Michot, Bulgarian Journal Physics, Vol.39, Pages 72-91, 2012.

[12]: Electric- Field- Induced Perfect anti-nematic order in Isotropic aqueous suspensions of a natural Beidellite clay, I. Dozov, E. Plaineau, P. Davidson, K. Antonova, C. Baravian, I. Bihannic, L. J. Michot, Journal of Physical chemistry, Vol.115, Pages 7751-7765, 2011.

[13]: Electric Properties of Macromolecules. V. Theory of Ionic Polarization in Polyelectrolytes, C. T. O’Konski, Journal of Physical Chemistry, Vol.64, N.5, Pages 605-619, 1960.

[14]: Manipulation de microparticules exploitant la force de diélectrophorèse: applications dédiées au tri d’espèces biologiques et à l’assemblage de nano objets, S.Sven, thèse de doctorat, Université de Toulouse, 2011.

[15] : Dynamic Mobility of Rodlike Goethite Particles, R. A. Rica, M. Jiménez, and A. V. Delgado, Langmuir, American Chemical Society, Vol. 25, N. 18, Pages 10587-10594, 2009.

[16]: Modélisation, réalisation et commande d’un système de micro-manipulation sans contact par diélectrophorèse, M. Kharboutly, Thèse de doctorat, Université de Franche-Comté, 2011.

Chapitre 4 :

Filtre optique accordable à base de suspensions de goethite

IV. 1. Introduction

Ce chapitre englobe tous les résultats obtenus jusqu'à présent concernant le projet NASTAROD. Il est divisé en plusieurs parties : la première concerne la transparence optique des solvants utilisés, leurs propriétés thermodynamiques et leurs comportements électrique et diélectrique vis-à-vis de la fréquence du signal électrique. La seconde partie concerne les mesures électro-optiques (biréfringence, dichroïsme et paramètre d'ordre). La troisième partie décrit les observations concernant les phénomènes électrocinétiques (diélectrophorèse) et enfin la quatrième et dernière partie recense les différents résultats obtenus concernant l'application des nanoparticules de goethite pour la fabrication d'un filtre optique Fabry-Perot accordable.

IV.2. Choix du Solvant

Durant notre étude, plusieurs solvants ont été testés : le H_2O , l'eau lourde (D_2O), l'éthylène Glycol (EG) et le diméthylsulfoxyde (DMSO). Dans cette partie nous allons nous intéresser à la transparence optique, dans le domaine infra-rouge, des différents solvants mais aussi à leur diverses propriétés thermodynamiques qui nous permettront par la suite de comprendre les différents phénomènes observés ainsi que les difficultés rencontrées dans le cadre de l'utilisation des suspensions de goethite pour la fabrication de filtre optique accordable.

IV.2.1. Transparence optique

Dans le cadre d'application dans les télécoms, nous avons analysé les spectres de transmission des différents solvants au fur et à mesure de l'avancement du projet. La première suspension étudiée avait l'eau dé-ionisée (EDI) comme solvant. Cependant ce solvant présente des pics d'absorption très prononcés dans la bande du proche infrarouge entre 1300 et 1550 nm. Cela nous a poussés à nous intéresser à d'autres solvants, dont les différents spectres sont illustrés dans la figure 1.

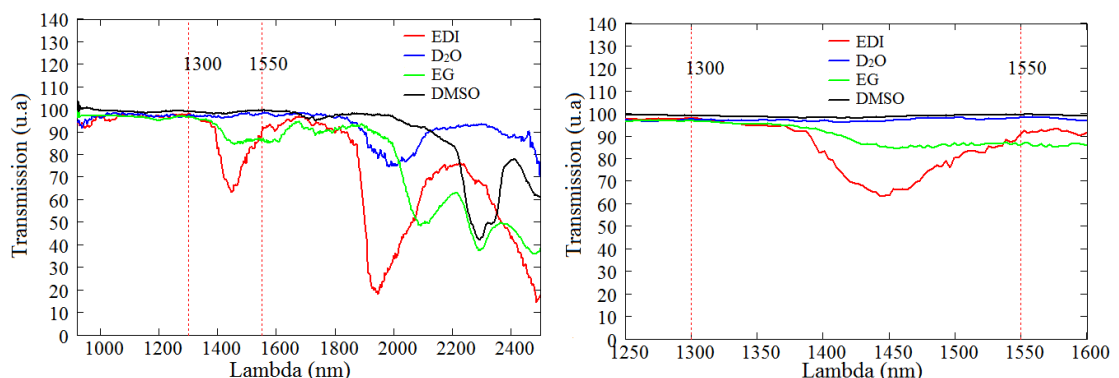


Figure 1. Spectres de transmission des différents solvants utilisés durant le projet NASTAROD avec des épaisseurs de cellules différentes (pour l'EDI et D_2O = 160 μ m, pour EG=200 μ m et pour DMSO=150 μ m).

Cependant le fait que les cellules ne font pas les mêmes épaisseurs (allant de 150 à 200 μm), cela implique à extraire le coefficient d'absorption $\alpha(\lambda)$ (exprimé en cm^{-1}) décrit dans la loi de Beer-Lambert :

$$I(\lambda, X) = I_0(\lambda) \cdot e^{-\alpha(\lambda)X} \quad (\text{IV.1})$$

Avec $I(\lambda, X)$ la puissance optique transmise, $I_0(\lambda)$ la puissance du signal incident et X le chemin optique (qui est le produit de l'indice de réfraction du milieu et son épaisseur). Après traitement des données de transmission optique illustrées dans la figure précédente, la comparaison du coefficient d'absorption des différents solvants est illustrée dans la figure 2.

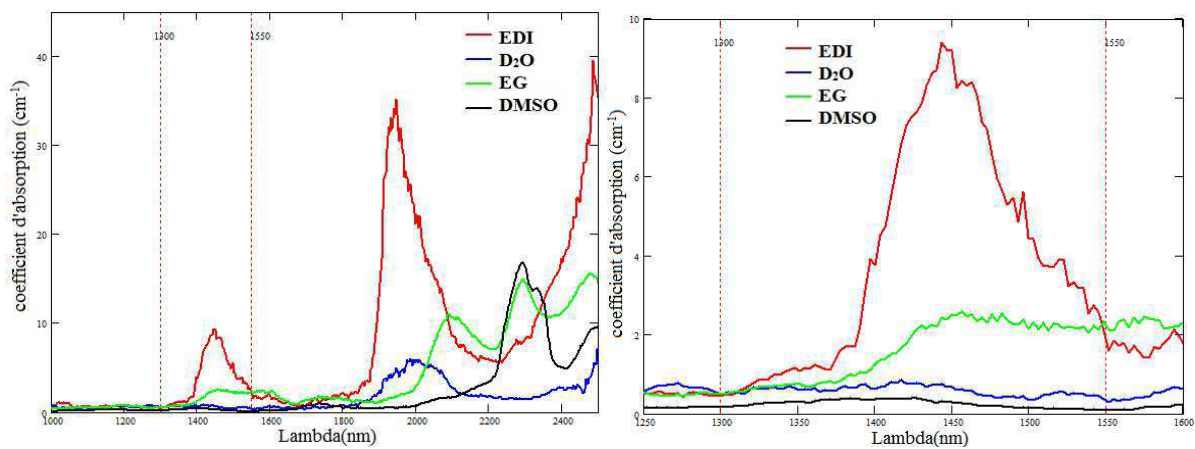


Figure 2. Coefficient d'absorption en fonction de la longueur d'onde des différents solvants.

Comme on peut le constater, l'EDI possède une absorption importante entre 1300 et 1550 nm. Cette dernière est due aux vibrations des molécules de H_2O . L'eau lourde (D_2O) possède des pics d'absorption décalés par rapport à l'eau, cela permet d'avoir de très faibles pertes dans les différentes bandes télécom. Cependant les propriétés thermodynamiques et électriques de ce dernier, comme on va le voir par la suite, nous ont contraint à changer encore une fois de solvant en utilisant l'Ethylène glycol, qui possède de meilleures propriétés thermodynamiques mais, comme on peut l'observer dans la figure ci-dessus, possède une absorption non-négligeable dans l'intervalle spectral visé. Ce qui nous a poussé à changer, une fois de plus, de solvant pour s'orienter vers le diméthylsulfoxyde (DMSO) qui a les bonnes propriétés de transparence optique, mais engendre d'autres problèmes technologiques (interactions d'ordre chimique avec les couches environnantes).

IV.2.2. Propriétés thermodynamiques et électriques

Dans cette partie nous allons nous intéresser aux différents paramètres électriques et thermodynamiques telles que la conductivité des solvants, leurs capacités thermiques (dérives

thermiques par effet joule) et la pression des vapeurs saturantes qui détermine la vitesse d'évaporation des solvants, conditionnant ainsi la durée de vie des échantillons.

Afin d'étudier les dérives thermiques nous avons essayé d'estimer la conductivité des solvants en utilisant des cellules de 1,1 cm² de surface et de 19µm d'épaisseur. Les électrodes sont en Au sans aucune protection à l'interface solution-électrodes. Les mesures sont faites avec une approximation d'un modèle RC en parallèle en appliquant un signal alternatif d'une fréquence de 100kHz et d'une amplitude de 1Volt. Les résultats obtenus sont illustrés dans le tableau 1.

	D₂O	EG	DMSO
Résistance (Ω)	38.7	502	150
Capacité (nF)	2.465	1.56	1.7

Tableau 1. Mesures RC des différents solvants.

Comme on peut le constater, dans le tableau ci-dessus, la résistance de l'Ethylène glycol est plus importante que celle de l'eau lourde, ceci peut venir de taux d'impuretés dans les solvants. Ces mesures permettent d'estimer l'ordre de grandeur de l'effet joule, décrit par la relation III.18, en prenant en compte une couche isolante en résine époxy SU8 ($\epsilon=4.1$) dont l'épaisseur est de 1.5 µm avec une surface d'électrodes de 2.25 mm² et une tension appliquée de 10 Volts cela donne pour l'eau lourde et l'Ethylène glycol, respectivement, une puissance générée par effet joule de 7.5 mW et 1.27mW en se basant sur les paramètres présentés dans le tableau 2.

	Capacité thermique (J/g/K)	Densité (g/cm⁻³)	Pression de vapeur saturante (Pa)
D₂O	4.18	1.10448	2740
EG	2.405	1.11016	12.59

Tableau 2. Propriétés physiques de l'Ethylene glycol et de l'eau lourde à 25°C.

En comparant les pressions de vapeurs saturantes entre les deux solvants, on peut déjà dire que du point de vue de durée de vie des échantillons l'EG est nettement plus approprié que l'eau lourde. De plus, à partir des valeurs des deux tableaux ci-dessus et de la relation III.18, nous avons pu simuler l'évolution la puissance de l'effet joule et ainsi avoir une estimation de l'évolution de la température en fonction de la tension appliquée, illustrées dans la figure 3.

Il faut noter que les mesures effectuées sur les résistances des solvants restent assez simples mais aussi approximatives. Malgré de meilleures propriétés concernant le DMSO, on n'a pas continué les tests en raison de sa réactivité avec les différentes couches isolantes testées à savoir SU8 et Polyimide.

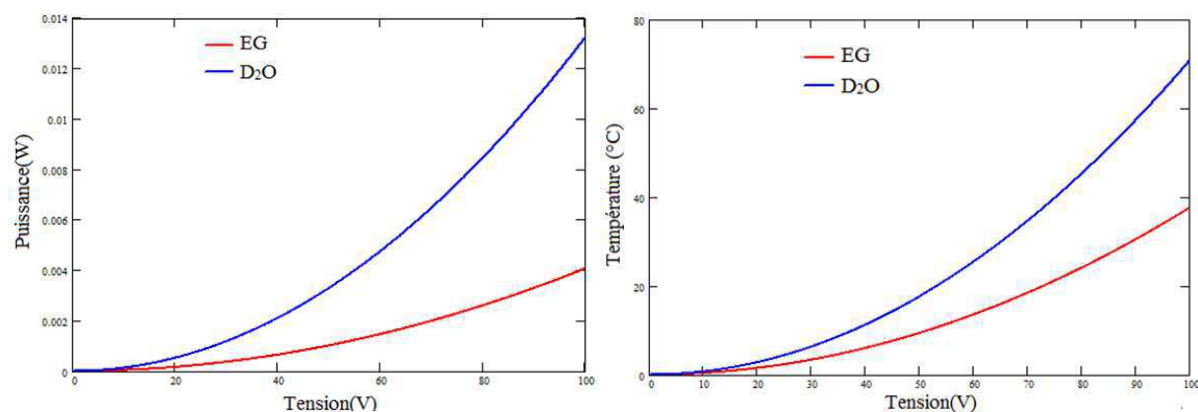


Figure 3. Simulation de l'effet Joule en fonction de la tension appliquée, pendant une seconde, pour le D₂O et EG.

IV.2.3.Dépendance en fréquence

Des mesures ont été faites au LPS (Orsay), pour déterminer le coefficient d'écrantage C_s qui est le rapport entre le champ électrique interne réel dans l'électrolyte et le champ appliqué. La figure 4. Illustre les résultats de C_s , normalisés, dans le cas d'une suspension de goethite dans l'eau avec différentes concentrations et dans la configuration de cellules capillaires. Les parties négatives sur certaines des courbes à basse fréquence signifient que les particules s'orientent perpendiculairement au champ électrique, due à un moment permanent perpendiculaire à l'axe long du bâtonnet.

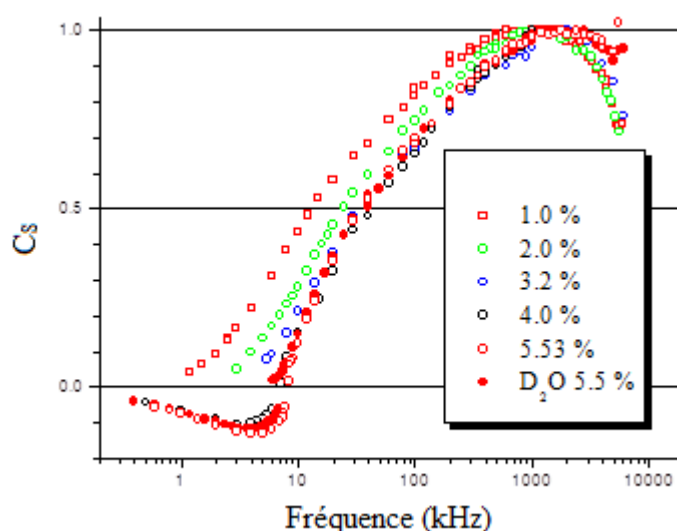


Figure 4. Mesures du coefficient d'écrantage en fonction de la fréquence, dans le cas de la goethite dans l'eau avec différentes concentrations.

La figure suivante, traduit une comparaison de la goethite dans différents solvants : l'eau, l'éthylène glycol (EG), N-Méthyl-2-Pyrrolidone (NMP) et Diméthyl Sulfoxide (DMSO). Les deux derniers sont obtenus en rajoutant le solvant et en procédant à l'évaporation de l'eau, ce qui implique une présence résiduelle d'eau et d'ions.

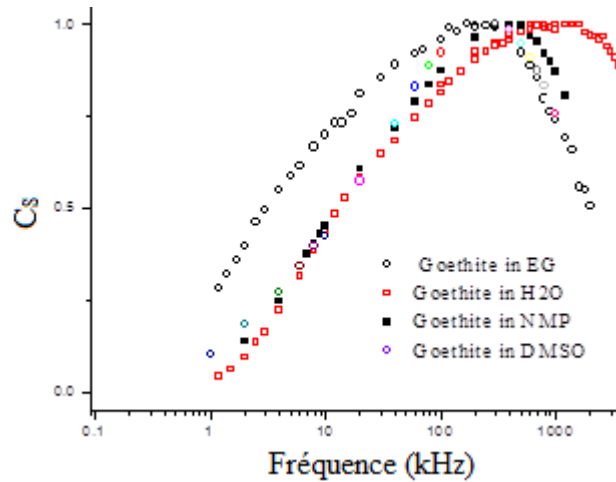


Figure 5. Mesures du coefficient d'écrantage en fonction de la fréquence, dans le cas de la goethite dans différents solvants.

Comme on peut le constater, à travers la figure 5, l'Éthylène glycol présente une fréquence plus basse, correspondant à une pénétration maximale du champ, en comparaison avec les autres solutions. Ceci peut s'expliquer essentiellement, en se référant aux relations III.20, par la conductivité plus élevée pour les autres solvants en raison de la présence résiduelle de l'eau et d'ions. Afin de confirmer cette observation, on a fait la comparaison entre des suspensions de goethite dans du DMSO préparée par la méthode de rajout de DMSO et évaporation de l'eau (échantillons: DMSO-L2C) et une suspension obtenue par dispersion de la goethite directement dans du DMSO, ne contenant pas donc ni de l'eau résiduelle ni d'ions rajoutés (échantillon: DMSO-LCMCP). Les résultats obtenus sont présentés dans la figure 6. Comme on peut observer, l'échantillon DMSO-LCMCP, présente une fréquence plus basse en comparaison avec les autres échantillons (DMSO-L2C). Ce qui confirme que la présence d'eau et des ions, engendre une élévation de la conductivité et de ce fait une augmentation la fréquence d'écrantage.

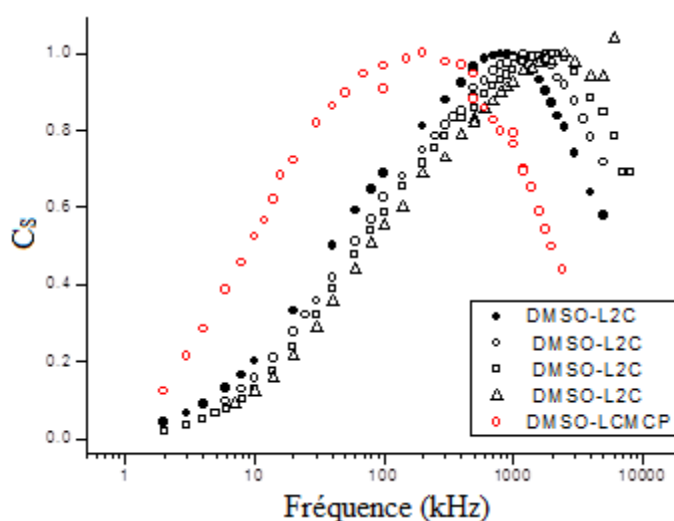


Figure 6. Mesures du coefficient d'écrantage en fonction de la fréquence, dans le cas de la goethite dans du DMSO avec deux méthodes de préparation.

Une autre comparaison, concernant la géométrie des cellules, cette fois-ci, a été réalisée entre une cellule de type capillaire et une cellule plate commerciale (Instec, épaisseur $9\mu\text{m}$ avec une couche isolante en Polyimide). Une suspension de goethite dans de l'Ethylène glycol est utilisée pour les deux cellules. Les résultats obtenus sont présentés dans la figure 7. Comme on peut le voir, la géométrie et la paramètres de la couche isolante (nature, permittivité relative et épaisseur) jouent un rôle dans la dépendance à la fréquence.

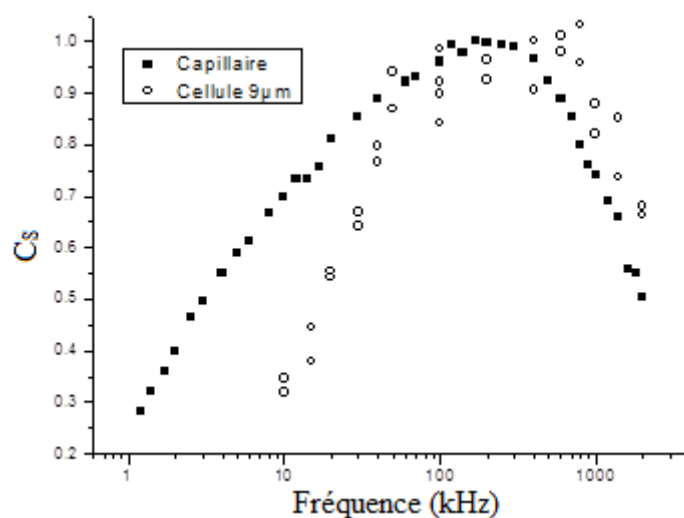


Figure 7. Mesures du coefficient d'écrantage en fonction de la fréquence, pour une suspension de goethite dans l'Ethylène glycol. Comparaison entre deux géométries différentes de cellules.

IV.3. Propriétés électrooptiques

Dans cette partie nous allons décrire les résultats concernant la biréfringence, le dichroïsme et le paramètre d'ordre des suspensions de goethite élaborées par nos partenaires du laboratoire de chimie de la matière condensée de Paris dans le cadre du projet Nastarod. La figure 8 est une illustration, à travers un cliché MEB et une photo de la solution, de la Goethite dans du H₂O avec un PH de 3. Les dimensions moyennes sont 150 x 25 x 10 nm³ avec un rapport de forme de 10.

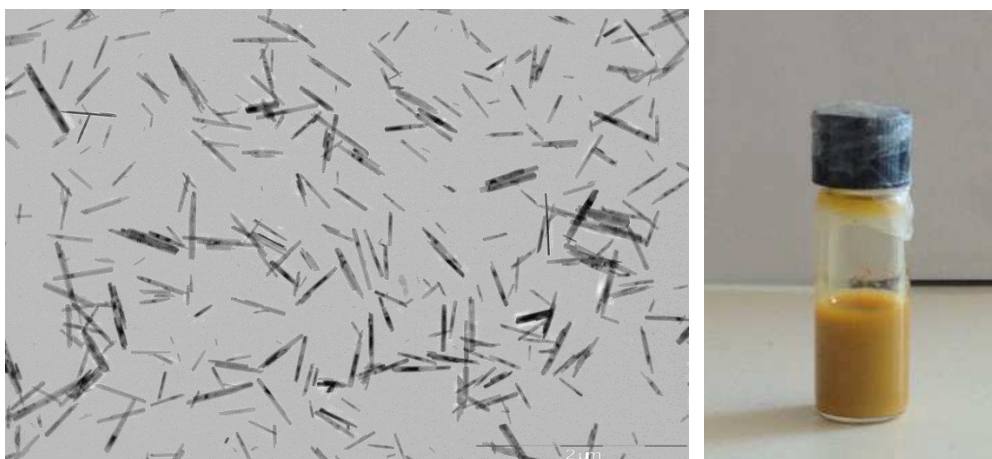


Figure 8. Goethite (α -FeOOH) dans du H₂O (PH=3). A gauche image MEB et à droite solution [1].

IV.3.1. Mesures de biréfringence

Les observations et mesures de biréfringence induite par le champ électrique sont effectuées en champ transverse conjointement entre nos collègues de Paris (pour les mesures) et au sein de notre équipe pour les observations et la fabrication des cellules plates.

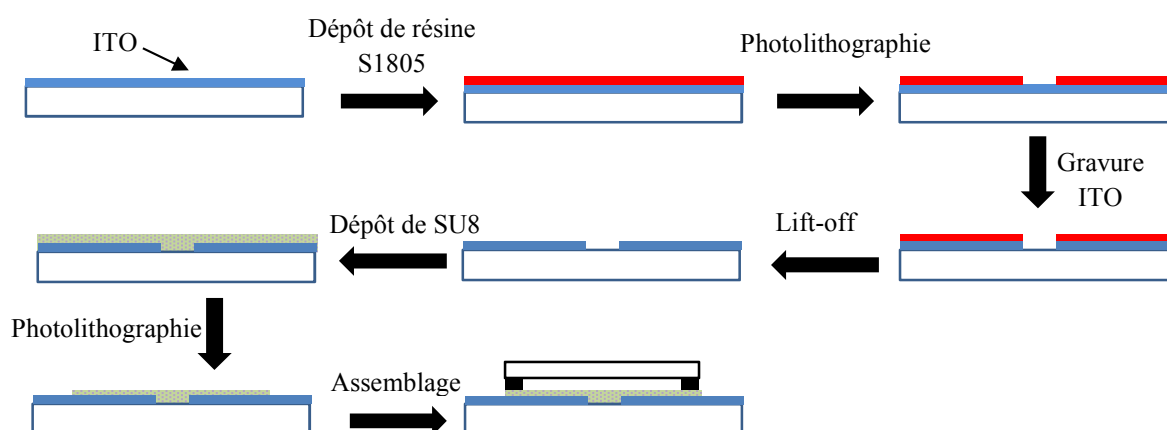


Figure 9. Différentes étapes de fabrication d'une cellule plate à électrodes transverses.

Une fois la cellule fabriquée comme illustrée dans la figure 9. On la remplit avec une solution de goethite dans l'Ethylène glycol. Les résultats obtenus sont illustrés dans la figure ci-dessous.

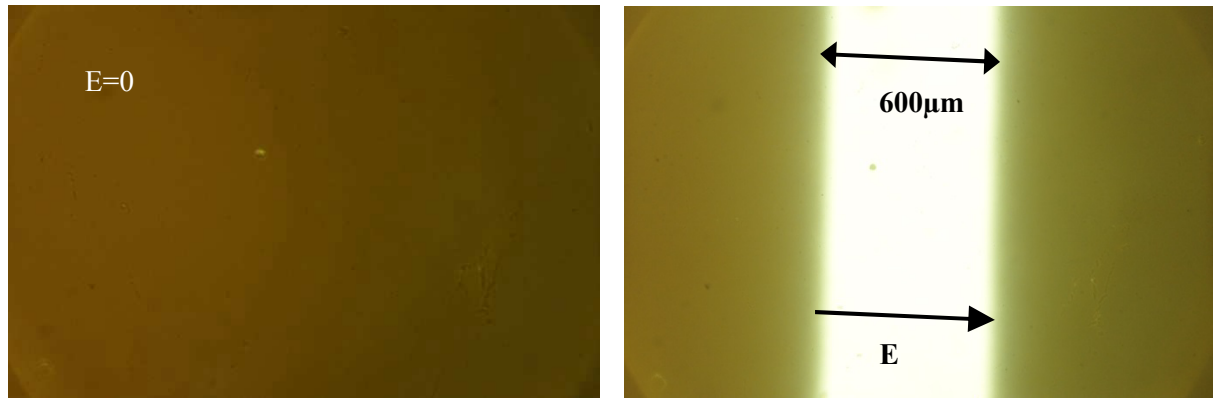


Figure 10. Photos sous microscope à polariseurs croisés. A gauche : $E=0$. A droite : $E \neq 0$.

Les mesures de biréfringence en capillaire sont effectuées au LPS (Laboratoire de Physique des Solides) de l'Université de Paris Sud 11 et le montage décrit par la figure 11. Les résultats obtenus sont illustrés dans la figure 12 où Δn^{sat} est la valeur saturée à très fort champ et E^{sat} est la valeur du champ extrapolée de la partie initiale linéaire de la courbe, qui donnera $\Delta n(E^{\text{sat}}) = \Delta n^{\text{sat}}$.

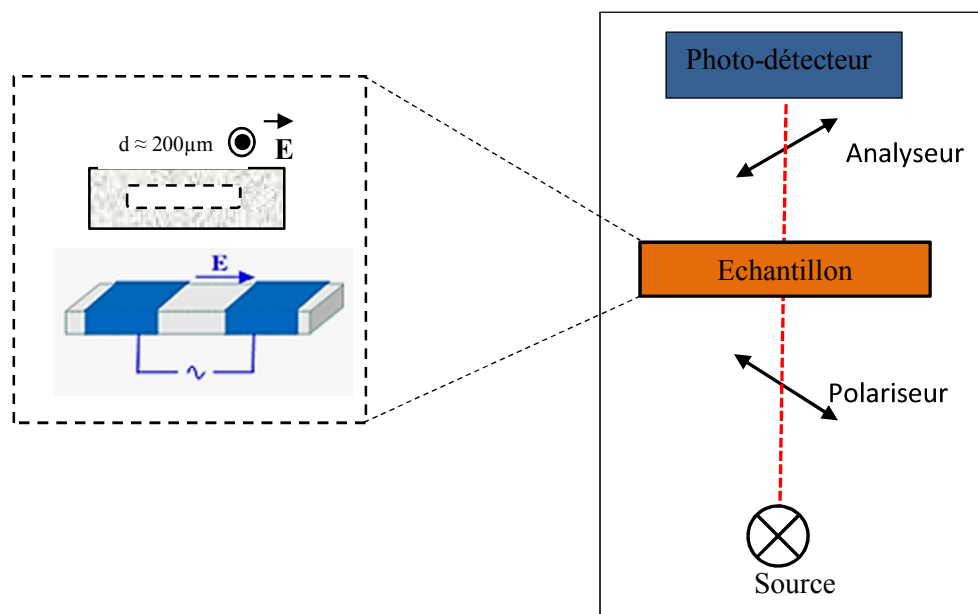


Figure 11. Schéma du banc de mesures de la biréfringence induite.

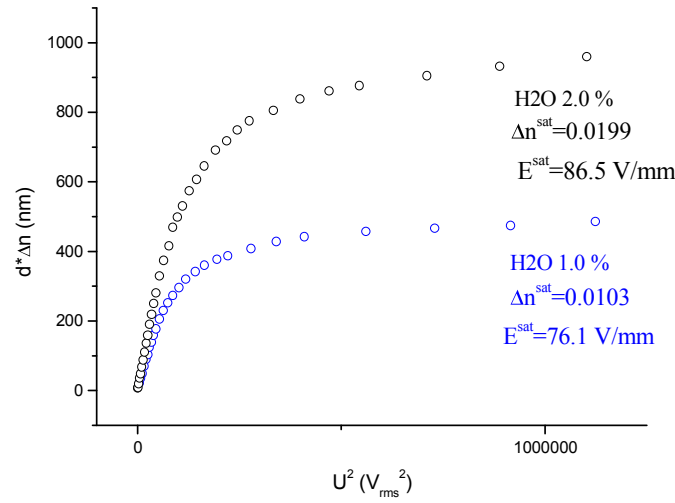


Figure 12. Mesures de biréfringence pour deux fractions de goethite dans l'eau.

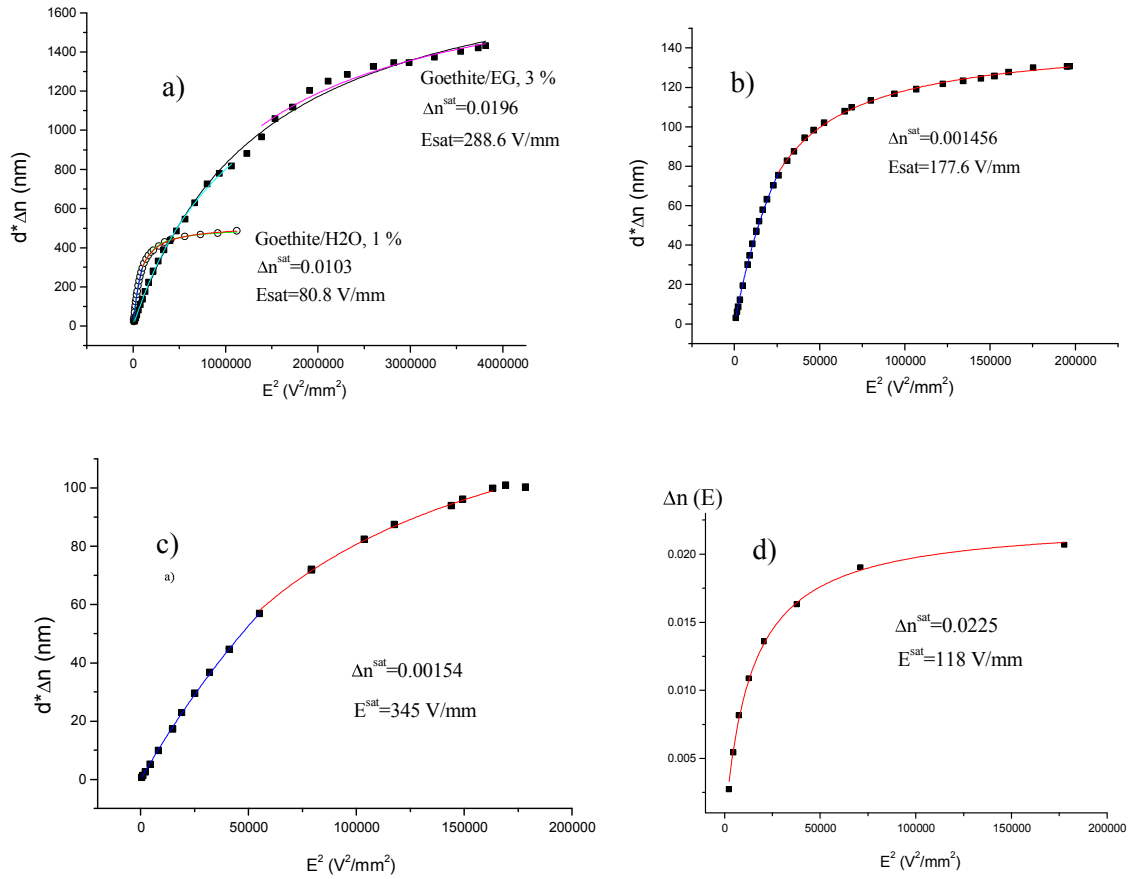


Figure 13. Mesures de biréfringence, dans des capillaires, de la goethite dans : a) H₂O et EG, b) DMSO 0.3%, c) NMP 0.3% et d) DMSO pur (DMSO-LCMCP) 2.27%.

La comparaison de deux fractions volumiques de goethite dans l'eau et comme prévu par la relation III.3. Δn^{sat} est proportionnelle à la fraction volumique et E^{sat} reste, approximativement, constant. D'autres mesures ont été effectuées avec les différents solvants, les résultats sont illustrés dans la figure 13. On constate que le champ de saturation dans le cas b) est plus élevé que dans le cas d), ceci est dû à la présence résiduelle de l'eau et des ions rajoutés.

IV.3.2. Mesures dichroïque

De même que pour la biréfringence, les mesures dichroïques, avec des cellules capillaires, ont été réalisées par nos collègues de Paris en utilisant le montage schématisé par la figure 14 et les différentes mesures sont illustrées dans la figure 15 où R^{sat} est la valeur saturée du rapport dichroïque, définit par la relation III.6, pour un champ de saturation E^{sat} .

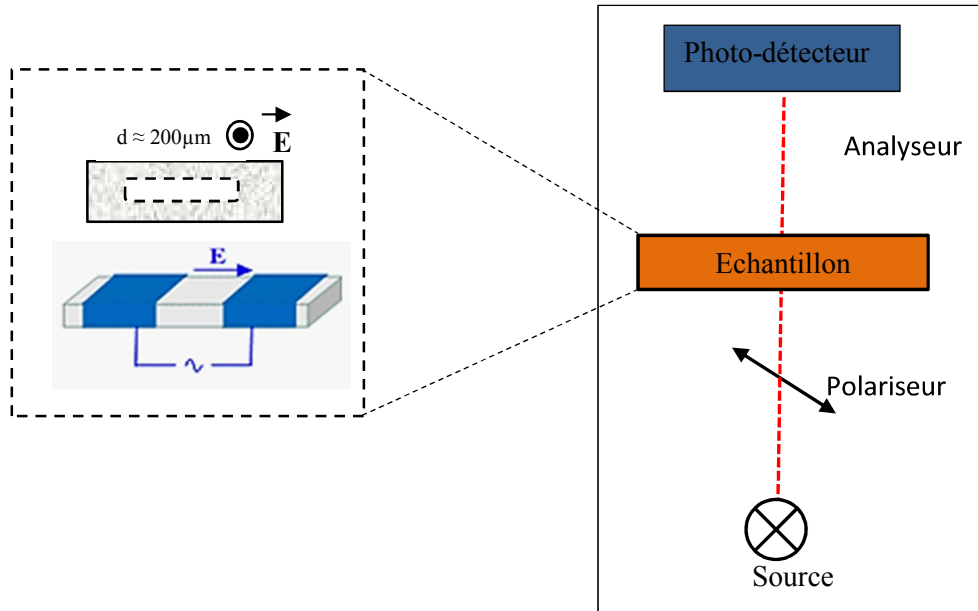


Figure 14. Schéma du banc de mesures de dichroïsme.

La même remarque que dans le cas de la figure 13 concernant la valeur du champ de saturation entre les deux suspensions de goethite à base de DMSO est observée dans les mesures de dichroïsme ci-dessous.

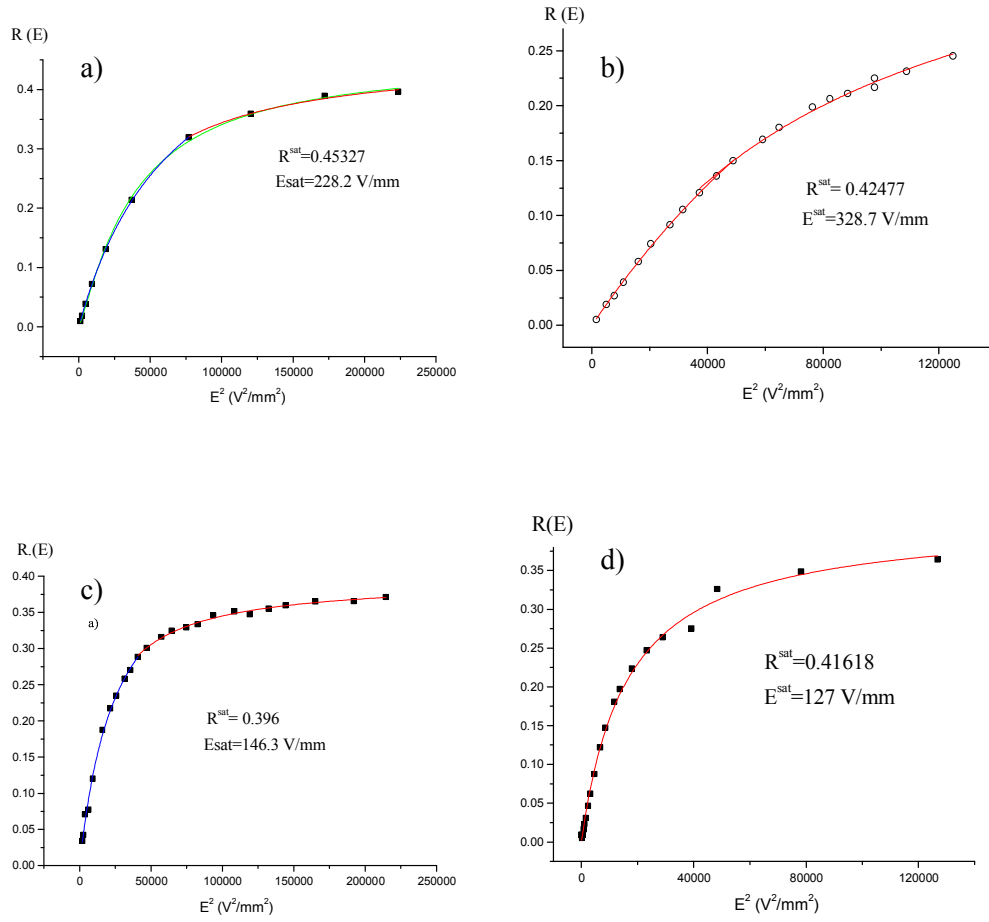


Figure 15. Mesures dichroïques, dans des capillaires, de la goethite dans : a) EG, b) NMP 0.3%, c) DMSO 0.3% et d) DMSO pur (DMSO-LCMCP) 2.27%.

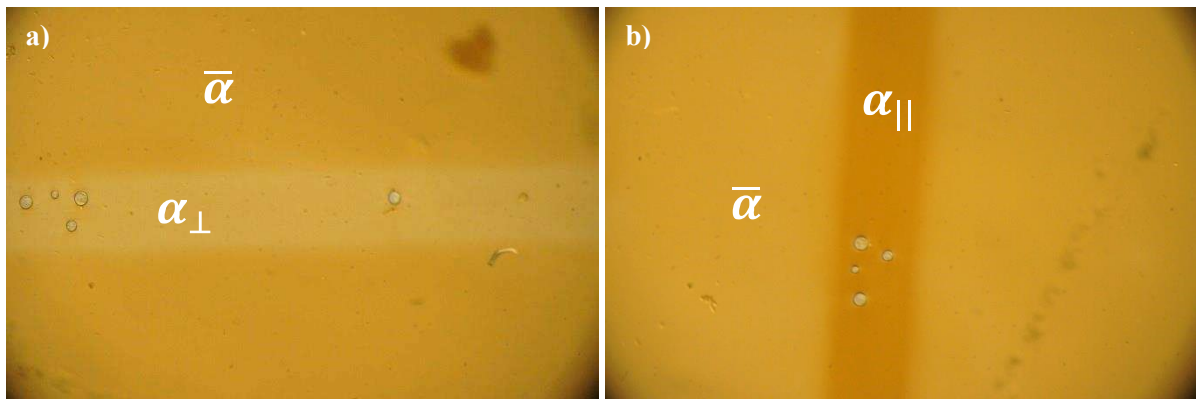


Figure 16. Photos sous microscope, à $E \neq 0$, de l'absorption de la goethite selon les axes des particules : a) petit axe, b) grand axe.

La figure 16 montre l'absorption, sous microscope sans polariseurs croisés, observée grâce à la cellule plate avec électrodes transverse décrite par la figure 9. L'absorption de la lumière dépend du coefficient d'absorption qui est plus élevé selon le grand axe, $\alpha_{||}$, de la particule et plus faible, α_{\perp} , selon le petit d'axe et cela en comparaison à l'absorption dans le cas isotrope et à champ nul, $\bar{\alpha}$, avec $\bar{\alpha} = (2\alpha_{||} + \alpha_{\perp})/3$. En d'autres termes, $\alpha_{||} > \bar{\alpha} > \alpha_{\perp}$ c'est pour cela l'image a) de la figure 16 est plus claire dans la zone inter- électrodes en comparaison au reste de la solution et que la même zone est plus sombre dans le cas de l'image b).

IV.3.3. Paramètre d'ordre

Comme on l'a cité dans le chapitre précédent, les deux méthodes de mesures à savoir la biréfringence et le dichroïsme permettent d'accéder au paramètre d'ordre induit par le champ comme on peut le constaté par les résultats expérimentaux, réalisés par notre collègue de Paris Ivan Dozov, dans le cas de cellules capillaires et une suspension de goethite dans l'eau avec une fraction volumique de 2% sont illustrés par la figure 17.

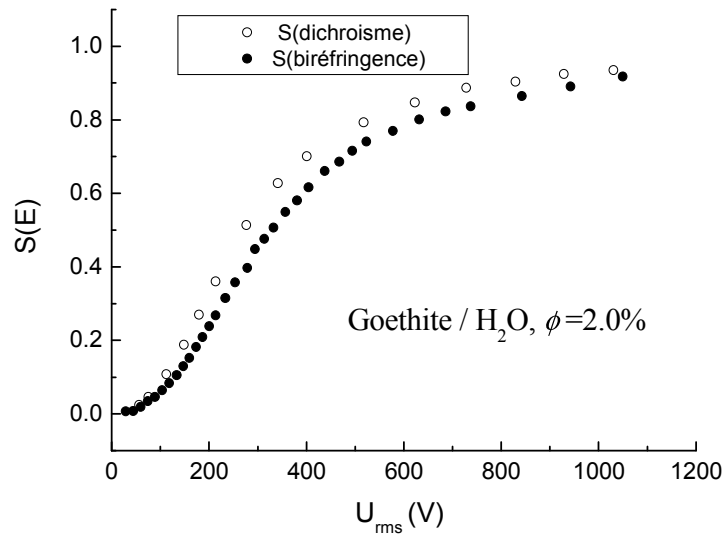


Figure 17. Comparaison du Paramètre d'ordre, induit par le champ, mesuré par dichroïsme et par biréfringence.

Le réchauffement par effet joule, dans le cas des cellules plates, peut aussi être observé grâce au paramètre d'ordre comme illustré dans la figure 18. En effet, le paramètre d'ordre S sature à sa valeur théorique qui vaut 1 comme on peut aussi l'observer expérimentalement, dans la figure 17. Cependant, en utilisant une cellule plate commerciale de type Instec dont l'épaisseur est de $9\mu\text{m}$ et ayant une couche isolante en Polyimide (PI), de quelques dizaines de nanomètres, remplie par une suspension de

goethite dans l'Ethylène glycol, on a constaté que le paramètre d'ordre n'atteigne pas la valeur théorique de saturation $S^{\text{sat}}=1$. La différence entre le paramètre d'ordre théorique à la saturation et celui mesuré expérimentalement est due à un fort réchauffement de la suspension par effet Joule.

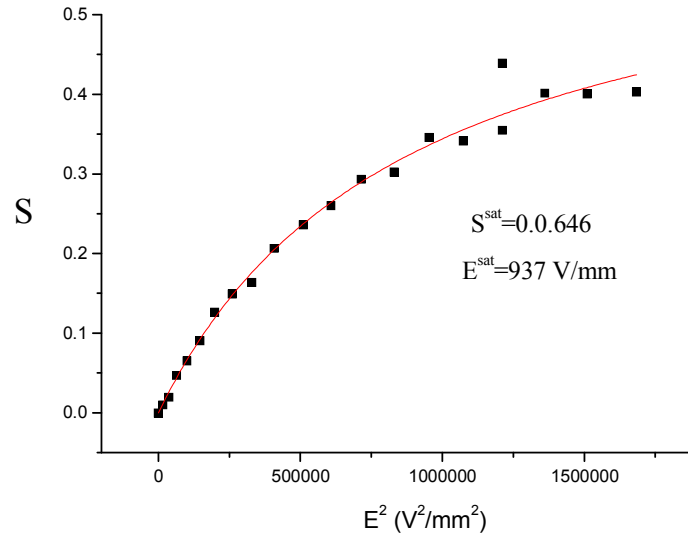


Figure 18. Paramètre d'ordre induit par le champ mesuré avec une cellule plate et une suspension de Goethite /EG.

IV.4. Effets électrocinétiques

Durant nos tests préliminaires afin d'étudier la potentialité d'utiliser les suspensions de goethite pour fabriquer un élément optique diffractif modulable en utilisant une cellule plate avec des électrodes transverses en ITO (configuration peigne) dont le pas est de $10\mu\text{m}$ et rempli par une suspension de goethite/EG, nous avons observé une accumulation de goethite au niveau des électrodes électriques comme illustrée par les photos obtenues au microscope de la figure 19. Cette accumulation est due à un fort gradient du champ électrique qui est caractéristique du phénomène de diélectrophorèse.

Vu la taille des électrodes ($5\mu\text{m}$) et afin de s'assurer de l'accumulation des nanoparticules à l'interface électrode/inter-électrode, nous avons fait un autre test en utilisant la même cellule décrite par la figure 9. Les résultats obtenus sont illustrés par des photos microscopes dans la figure 20. Comme on peut l'observer, en laissant la cellule sous champ assez longtemps, les nanoparticules de goethite s'accumulent au niveau de l'interface électrode/ inter-électrode. Autrement dit, elles sont attirées vers les régions à fort gradient de champ.

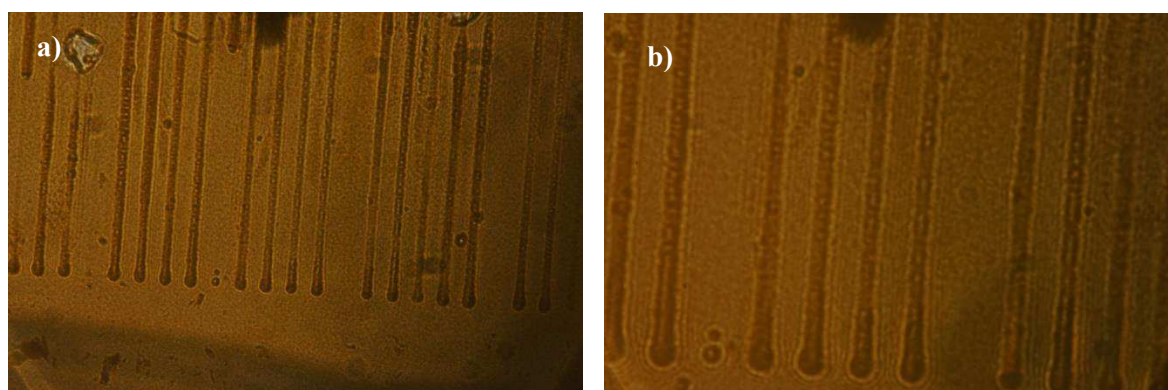


Figure 19. Phénomène de diélectrophorèse :a) Observation sous microscope de l'accumulation des nanoparticules de goethite. b) Agrandissement de a).

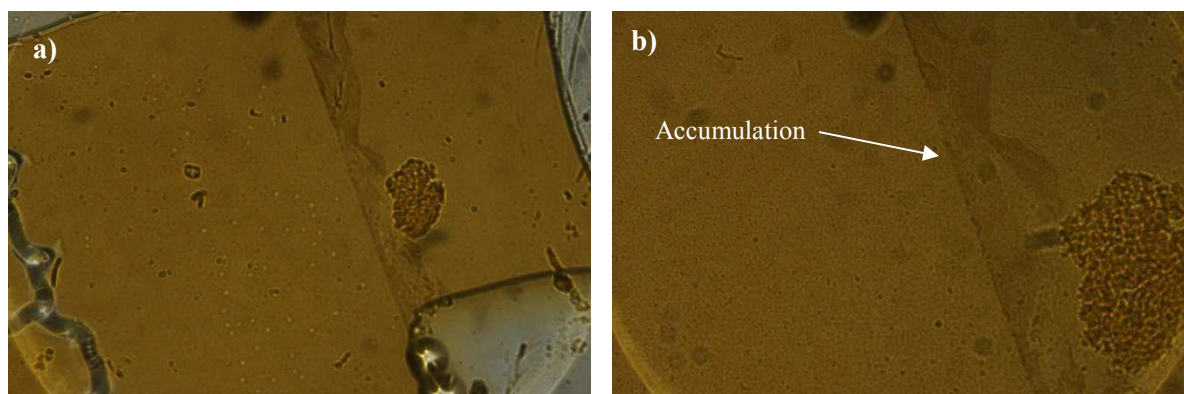


Figure 20. Phénomène de diélectrophorèse dans la cellule de la figure 9 :a) Observation sous microscope de l'accumulation des nanoparticules de goethite. b) Agrandissement de a).

IV.5. Filtre optique Fabry-Pérot accordable

L'une des applications potentielles des suspensions de nanoparticules de goethite, comme matériau électrooptique, est la réalisation d'un filtre optique accordable. Pour cela nous avons conçu et fabriqué des cellules de type Fabry -Pérot. L'optimisation de ce type de filtre était une tâche ardue, comme on va le voir par la suite, en raison des différents problèmes technologiques qu'on a essayé de résoudre mais aussi pour la compréhension des phénomènes entrant en jeu. Mais avant de donner les différents résultats obtenus jusqu'à maintenant, nous allons détailler la fabrication de ce genre de filtre optique.

IV.5.1. Fabrication du Filtre optique

Pour fabriquer le filtre Fabry-Pérot, on utilise deux miroirs métalliques en or couverts de couches isolantes (généralement en SU8). Pour cela, on dépose une couche d'or sur des verres ITO

carrés de 20 mm de côté et de 1.1mm d'épaisseur. Grâce à un bâti de pulvérisation cathodique à plasma d'Argon durant 150 secondes avec une tension de 2 kV et un courant de 25 mA, on obtient une couche d'or d'environ 20 à 30 nm d'épaisseur et un coefficient de réflexion majoré à 98.7%@1550nm. Notons que la présence d'ITO permet d'augmenter l'adhérence de l'or sur le verre [2]. Une fois la couche d'Au déposée, celle-ci ainsi que celle de l'ITO sont gravées, à travers un masque en résine S1805[®] réalisé préalablement, chimiquement. Pour cela nous avons utilisé, pour l'or, un mélange de $K_2I_2:I_2:H_2O$ (4g :1g : 40mL). Par contre, pour l'ITO, le mélange utilisé est $HCl:FeCl:H_2O$ (1 :1 :2) suivi par un rinçage à l'acétone afin d'éliminer le masque en résine. Ce process permet d'obtenir des miroirs en Or de 1.5 mm de côté mais aussi les électrodes avec les mêmes étapes de fabrication. Afin d'isoler électriquement les électrodes, nous avons utilisé une résine époxy SU8 d'une épaisseur de 1.5 μ m : A partir de la SU8 2025, nous avons effectué une dilution pour obtenir l'épaisseur souhaitée. Un spin-coating de la résine SU8 est réalisé sur toute la surface des verres en prenant soin de dégager les contacts électriques. L'étape suivante consiste à assembler les deux miroirs avec un joint de colle photo polymérisable(NOAA68) contenant des espaceurs de 18 μ m. Les spectres du Fabry-Pérot, grâce à ce process, sont représentés dans la figure 22. Une fois la cellule assemblée, le remplissage est effectué par capillarité.

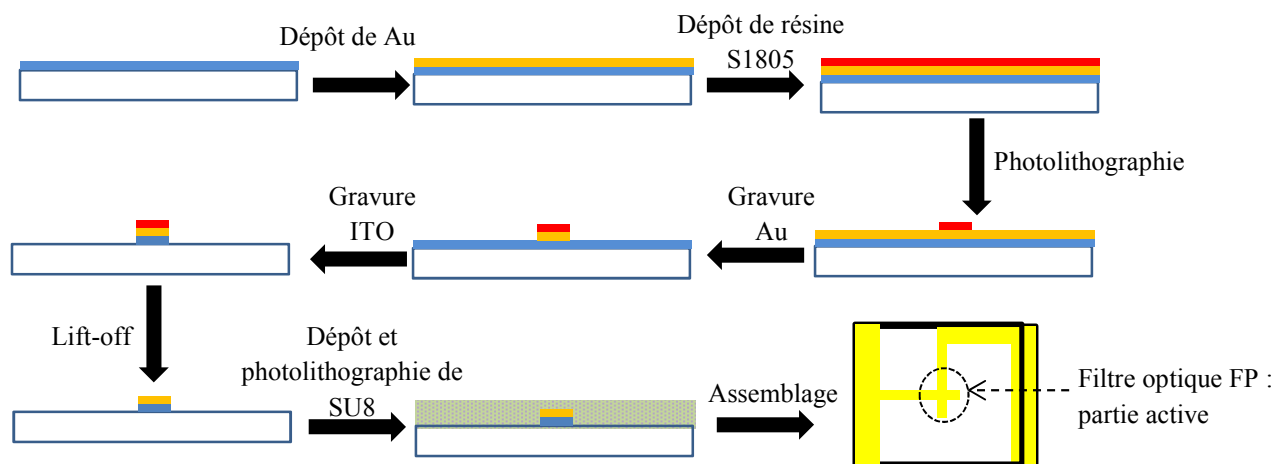


Figure 21. Différentes étapes de fabrication d'une cellule de type Fabry-Pérot.

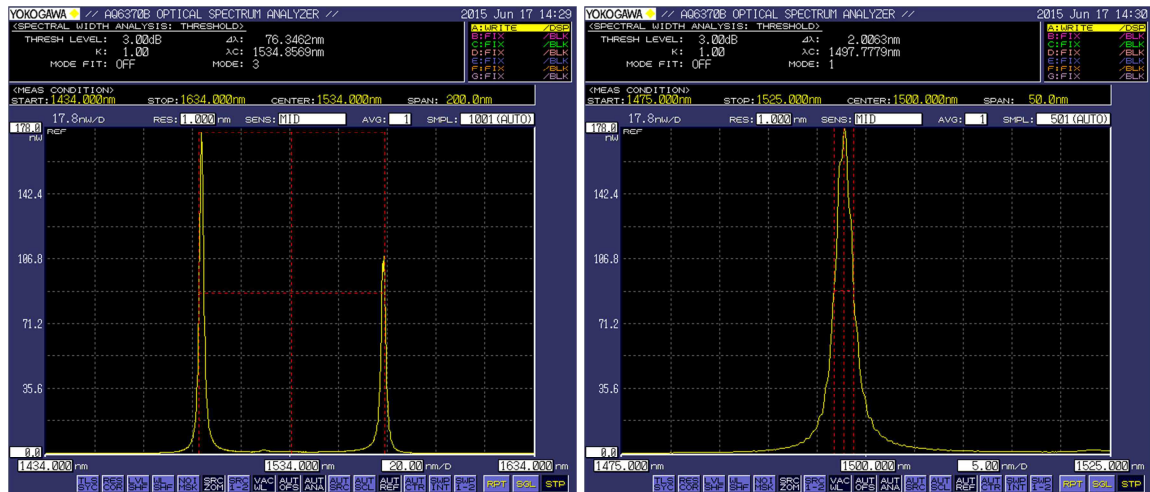


Figure 22. Les spectres du Fabry-Pérot fabriqué selon les étapes de la figure 21.

IV.5.2. Résultats et discussions

Les premiers résultats expérimentaux du projet Nastarod, ont été obtenus avec une solution de la goethite dans de l'eau lourde, avec une fraction volumique de 5.53%. Le filtre optique est fabriqué avec des miroirs diélectriques dont une des électrodes était gravée. Le banc de caractérisation utilisé est illustré par la figure 23. Les résultats obtenus pour deux fréquences différentes sont illustrés dans la figure suivante 24.

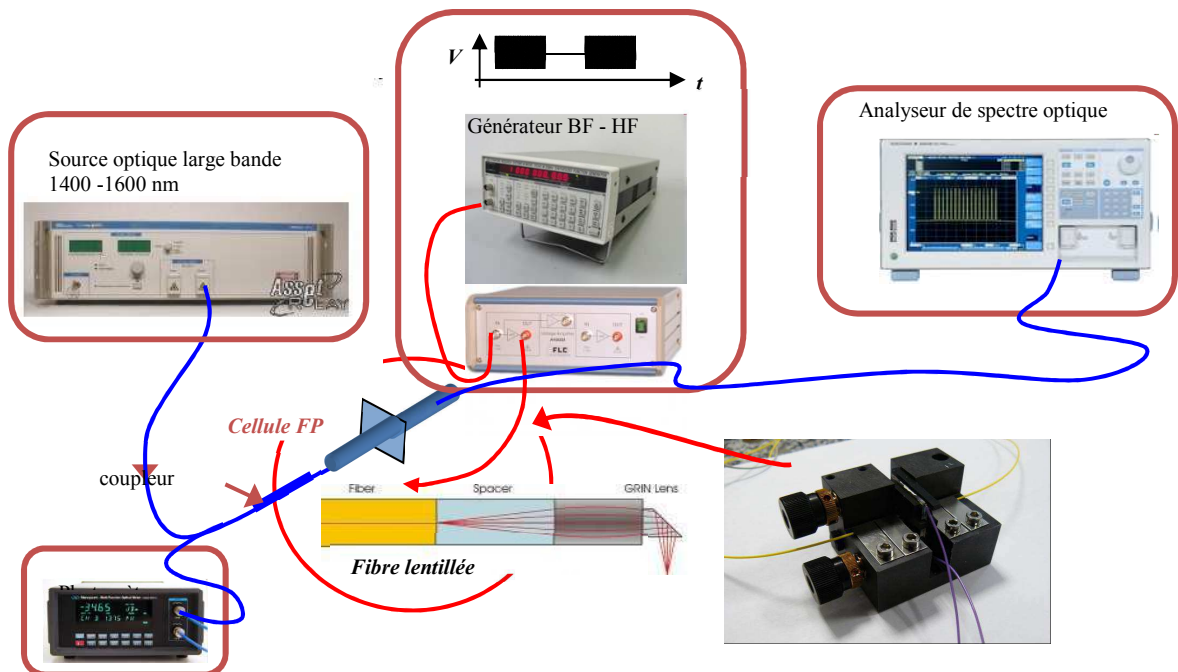


Figure 23. Banc de caractérisation

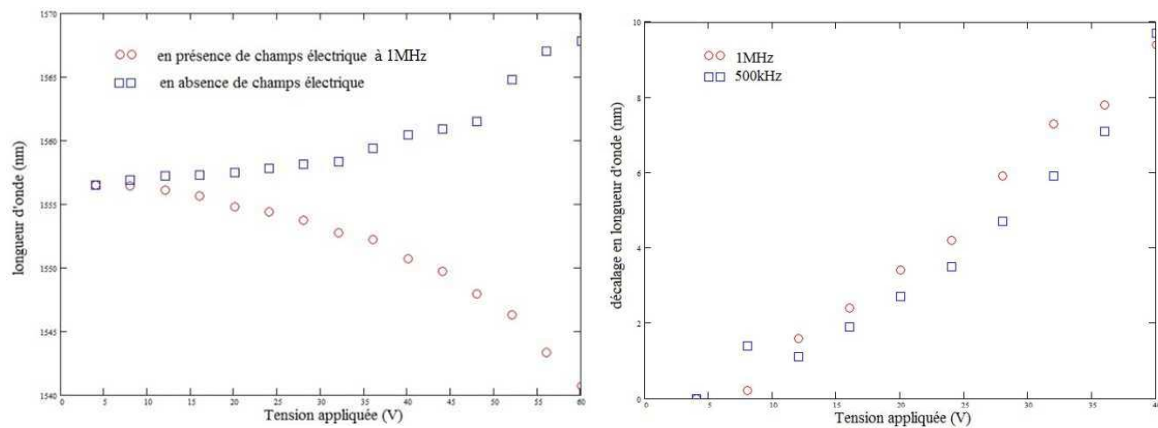


Figure 24. Mesures du décalage spectral du filtre.

Comme on peut le constater sur la figure ci-dessus, dans la courbe à gauche, des dérives thermiques observables en absence de champ électrique. Ils sont dus à l'échauffement de la solution par effet joule, ce qui fait augmenter la pression dans la cellule provoquant ainsi une dilatation du joint de colle et finalement une dérive vers les plus grandes longueurs d'onde. Afin de diminuer l'impact de cet effet nous avons choisi de réduire la taille des électrodes en choisissant le design illustré dans la figure 21. Cette nouvelle configuration a l'avantage de posséder un grand volume de solution entourant la partie active, ce qui se traduit par un refroidissement plus rapide par transfert thermique donc une meilleure stabilité. De plus en raison de la pression de vapeur saturante du D_2O élevée, on a travaillé sur le design du joint en réduisant les ouvertures pour le remplissage et fermer la cellule en échauffant légèrement celle-ci afin que la colle rentre à l'intérieur lors du refroidissement ce qui permet de rendre la cellule plus étanche. La figure 25 illustre un test effectué avec de la goethite dans du D_2O qui est une dilution à 50% massique de la solution mère et, comme on peut le constater, malgré le changement de design, les dérives thermiques subsistent. La même remarque concernant d'autres dilutions (25% et 13.36%). Dans l'idéal on devrait avoir une valeur de la longueur d'onde inchangée en absence de champ électrique et ce durant tout le test. C'est pour cette raison qu'on a pensé d'ajouter un autre solvant qui est l'Ethylène glycol afin d'observer son effet sur les dérives thermiques.

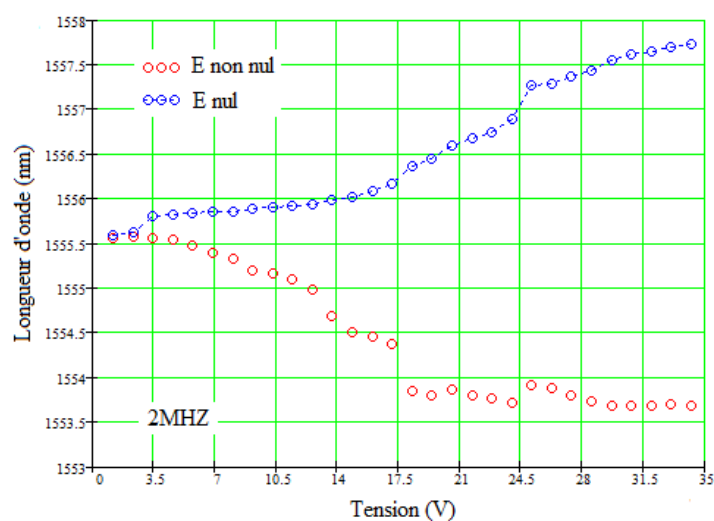


Figure 25. Décalage spectral du pic avec et sans le champ électrique pour Goe/D₂O à 50 % de la solution mère à une fréquence de 2MHZ.

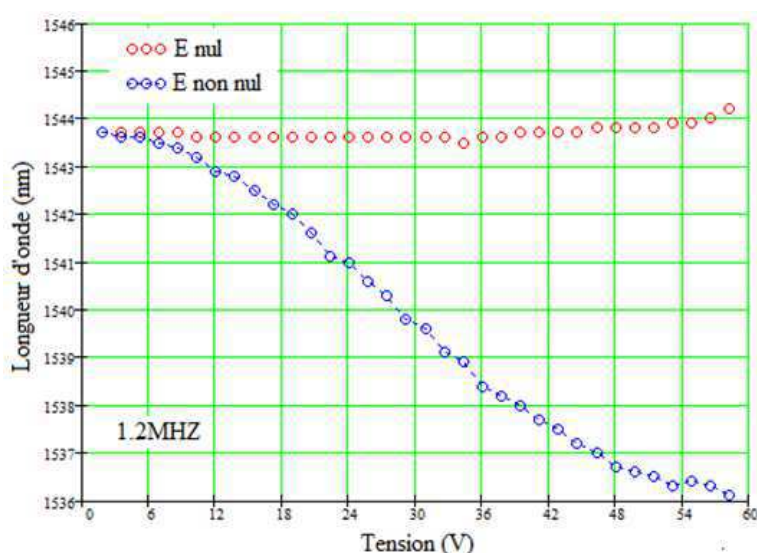


Figure 26. Décalage spectral du pic avec et sans le champ électrique pour un mélange de 2/3 d'éthylène glycol et 1/3 de Goethite dans du D₂O.

Comme on peut le constater, à travers la figure 26, l'ajout de l'éthylène glycol a permis de mieux stabiliser la longueur d'onde quand on coupe le champ électrique. Cela signifie que la chaleur créée par l'effet joule est évacuée plus rapidement de la zone active que dans le cas précédent ou/et grâce à la réduction de la pression de vapeur saturante conséquence de la présence d'EG. Par contre, pour savoir si l'effet joule est réduit sous l'influence du champ, nous avons comparé le décalage en longueur d'onde entre deux cellules, l'une contenant le mélange cité ci-dessus et l'autre un mélange de solvants purs avec les mêmes proportions (2/3 d'EG et 1/3 de D₂O). Le résultat est donné dans la figure 27.

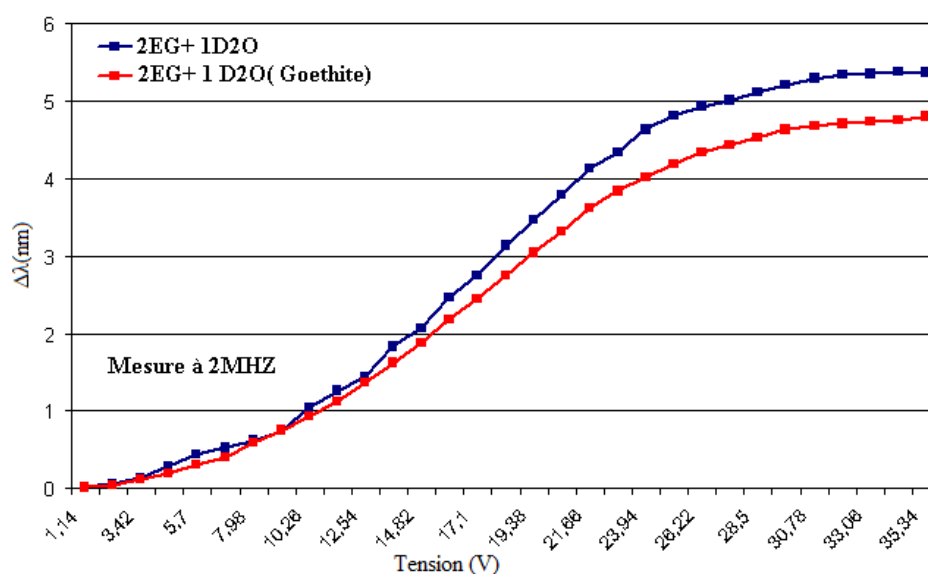


Figure 27. Accordabilité spectrale du filtre optique pour un mélange de 2/3 d'éthylène glycol et 1/3 de Goethite/D₂O et le même mélange sans nanoparticule de goethite

Comme on peut constater sur la figure 27, il n'y a quasiment pas de différence entre les deux courbes, cela se traduit par un effet joule toujours important une conséquence directe d'une conductivité toujours élevée qui résulte de la présence de l'eau lourde et des ions mais aussi en raison d'un effet électrostatique, qui est amplifié par la présence du solvant. Pour cette raison nous avons travaillé avec nos partenaires afin de changer de solvant en passant du D₂O à l'éthylène glycol pur. Les résultats obtenus avec cette nouvelle formulation sont illustrés dans la figure suivante. On peut remarquer que les dérives thermiques sont minimisées en comparaison à l'utilisation de l'eau lourde. Après ce résultat encourageant, nous avons essayé de déterminer la fréquence optimale pour le fonctionnement du filtre, pour cela nous avons utilisé une cellule avec des électrodes ITO et une couche isolante en SU8(142 nm), puis on a fait les mesures dichroïques en mesurant la puissance du signal optique en fonction de la fréquence tout en gardant une tension appliquée constante, les résultats obtenus sont donnés par la figure 29.

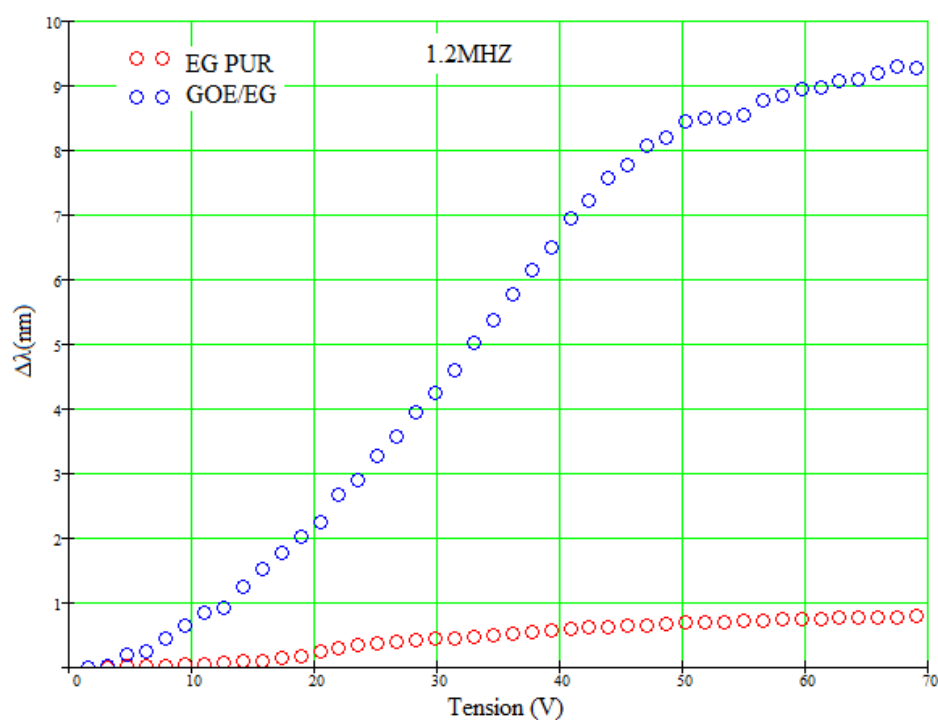


Figure 28. Accordabilité spectrale du filtre optique pour une suspension de goethite dans de l'éthylène glycol et de l'éthylène glycol pur.

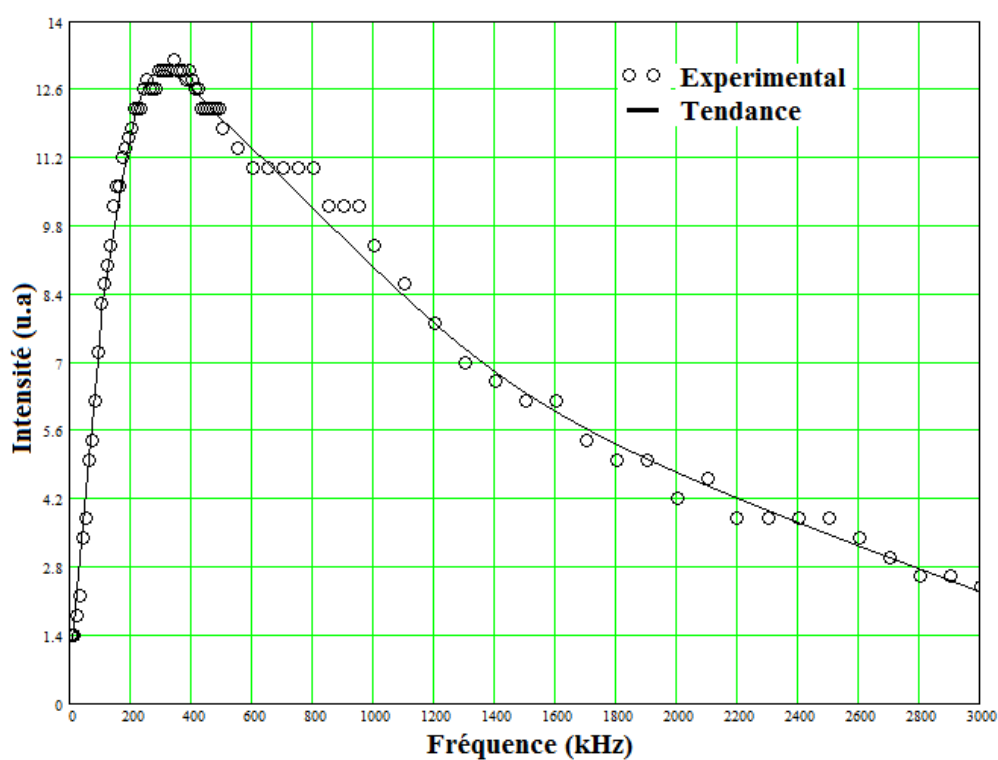


Figure 29. Mesures dichroïques en fonction de la fréquence pour GoE/EG à 2%.

Comme on peut le voir sur la figure 29, la courbe présente un maximum pour une fréquence aux alentours de 400kHz pour laquelle on aura un fonctionnement optimal du filtre. Cependant on se remettant dans la configuration Fabry-Pérot, on constate que pour cette fréquence, il n'existe pas de saturation même avec une tension appliquée de 100 volts comme on peut l'observer dans la figure 30. L'explication se trouve dans la relation III.19. En effet le changement de l'épaisseur de la couche isolante ($1.5\mu\text{m}$) affecte l'amplitude du champ vu par la suspension mais aussi la fréquence pour laquelle le champ électrique est maximal. La figure 31 représente les simulations effectuées, qui montre qualitativement cette observation en prenant les deux épaisseurs des couches isolantes (142nm et $1.5\mu\text{m}$) et en se basant sur les mesures électriques relatives à l'éthylène glycol du tableau 1.

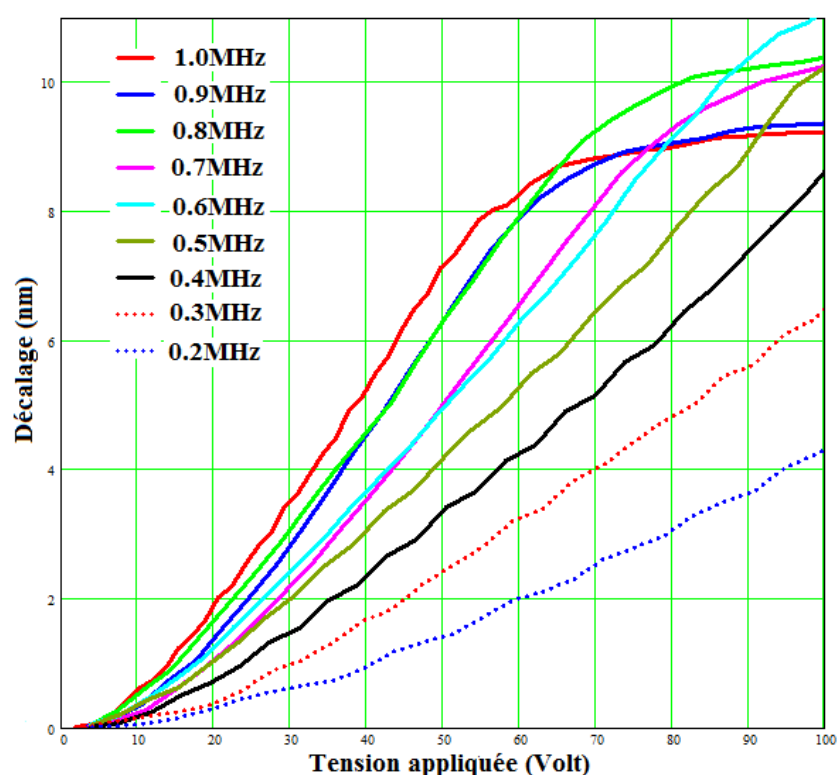


Figure 30. Accordabilité spectrale du filtre optique pour une suspension de goethite dans de l'éthylène glycol en fonction de la tension et la fréquence.

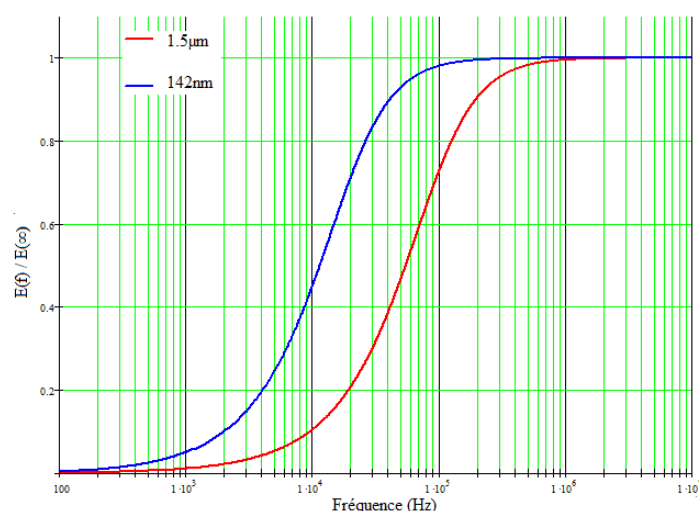


Figure 31. Champ électrique, vu par la suspension en fonction de la fréquence, normalisé par rapport au champ à fréquence infinie

Les résultats obtenus concernant l'éthylène glycol sont très encourageants, cependant ils restent insuffisants en raison des dérives thermiques. De plus, comme on a vu dans la figure 2, il absorbe dans l'infra-rouge c'est pour cela d'autres solvants aprotiques doivent être testés en étudiant leur stabilité colloïdale. Ces tests préliminaires sont faits en diluant une suspension de 5.53% de goethite dans de l'eau dans des solvants polaires aprotiques avec un rapport de 1/20 en masse, les résultats obtenus sont illustrés dans le tableau 3. Comme on peut le voir, à travers cette étude préliminaire, il existe trois solvants qui sont susceptibles de remplacer l'éthylène glycol. Le DMSO qui possède une conductivité très faible en comparaison à l'éthylène glycol, malheureusement il est incompatible avec les couches isolantes qu'on utilise. Autrement dit, le DMSO attaque la SU8 [3] un résultat observé durant les tests des suspensions à base de DMSO à travers une instabilité spectrale et dégradation rapide des cellules dues à une conductivité très élevée. Des tests ont également été fait avec des nanoparticules de Goethite dans du NMP (N-Méthyl-2-Pyrrolidone). Les premiers résultats effectués au LPS sont très encourageants à la fois concernant les propriétés de conductivité et concernant la stabilité chimique des cellules (pas de gélification observée de la suspension).

Solvants		Agrégation immédiate	Agrégation rapide	Redistribution sous ultra-sons	Stabilité à long terme
Diméthylsulfoxyde	DMSO	NON	NON		OUI
N-Methyl-2-pyrrolidone	NMP	NON	NON		OUI
Dimethylformamide	DMF	NON	OUI	OUI	NON
Propylène carbonate	PC	OUI		OUI	OUI
Acetonitrile	AN	OUI		NON	NON

Tableau 3. Tests préliminaires de la stabilité colloïdale dans les solvants polaire aprotique.

IV.6. Conclusions

Ce chapitre réunit les résultats expérimentaux obtenus dans le cadre du projet NASTAROD. Les tests effectués sur le composant optique de type Fabry Péroth ont permis de mettre en évidence certaines problématiques majeures, qui nous ont contraint à faire évoluer la suspension de goethite, tel que la transparence optique des suspensions nécessaire à une bonne finesse spectrale du filtre, la pression de vapeur saturante très élevée de certains solvants engendre des difficultés technologiques rédhibitoires et aussi la conductivité ionique qui peut entraîner un échauffement par effet joule provoquant ainsi des dérives thermiques. Les filtres optiques sont extrêmement sensibles à ces dernières.

Malgré toutes les difficultés rencontrées, les résultats obtenus restent néanmoins encourageants. Cela nous a poussé à faire évoluer la suspension en changeant plusieurs fois le solvant mais aussi à optimiser les aspects technologiques des filtres. Cependant, les dérives thermiques, toujours présentes, restent un problème de taille pour des applications dans le DWDM avec un espacement des canaux de 0.8nm (100 GHz). Par contre, une régulation thermique peut être envisageable par l'ajout d'une cellule Peltier, ce qui revient à remettre en cause l'un des avantages essentiels de cette technologie à savoir un bas coût. Néanmoins, la potentialité d'autres applications dans des dispositifs moins affectés par ces dérives thermiques est envisageable tel que les déphaseurs ou des commutateurs optiques de type Mach-Zehnder.

Enfin des applications non télécom sont également à envisager comme de l'affichage. Le principal problème de cette technologie est la fréquence d'adressage liée à la conductivité ionique, qui entraîne, même si les amplitudes de champ sont faibles, une forte consommation au niveau des électroniques de pilotage.

Références

- [1] : Electric Birefringence and Electric Dichroism of Goethite Colloidal Suspensions, D.Coursault, C. Blanc, M. Nabili, L. Dupont, S. Abbas, P. Davidson, C. Chaneac and I. Dozov, 25th International Liquid Crystal Conference (ILCC), 29 Juin – 4 Juillet 2014, Dublin, Ireland.
- [2]: The effect of Ti and ITO adhesion layers on gold split-ring resonators, C. Jeppesen, N.A.Mortensen and A.Kistensen, Applied Physics Letters, Vol.97, N.26, Pages 1-3(263103), 2010.
- [3]: Acid-catalysed oxidative ring-opening of epoxide by DMSO. Theoretical investigation of the effect of acid catalysts and substituents, S.Antoniotti, S. Antonczak, J.Golebiowski, Theoretical Chemistry Accounts, Vol.112, N.14, Pages 290-297, 2004.

Conclusion générale et perspectives

De nos jours, les filtres optiques accordables sont des composants incontournables de par leurs diversité d'applications dans différents domaines tel que les télécommunications, l'instrumentation l'aéronautique, la médecine...etc. Concernant les télécommunications, le passage à la technologie WDM et plus spécifiquement DWDM (Dense WDM), en raison de l'augmentation continue de nombre d'utilisateurs et le volume de données échangées grandissant, nécessite des sources laser et des filtres accordables très performants de point de vue de spectral. Le filtre Fabry-Pérot constitue un très bon candidat de par sa haute sélectivité spectrale. Cette thèse, à travers deux projets ANR, s'est inscrite dans cette thématique. Pour commencer, le projet Selectaccess avec comme objectif l'amélioration des composants existants comme les micro-résonateurs en anneaux, en proposant une solution permettant de s'affranchir de la dépendance à la polarisation, grâce aux propriétés des cristaux liquides. Puis NASTAROD avec comme objectif l'étude des potentialités d'autres matériaux comme les suspensions de nanoparticules de goethite. D'abord on a en premier lieu présenté l'état de l'art des filtres interférentiels accordables à travers leur principe de fonctionnement, les différentes technologies d'accordabilité et certains domaines d'applications. Suivi d'un second chapitre qui a été dédié à la conception et la fabrication des coupleurs séparateurs de polarisation à base la technologie cristal liquide polymérisable. On a vu que cette technologie développée constitue une solution élégante par sa simplicité afin de minimiser cette dépendance. Les résultats obtenus, concernant cette première partie, sont publiés dans la revue IEEE PTL (Photonics Technology Letters).

La seconde partie de ce manuscrit traite des travaux réalisés dans le cadre du deuxième projet ANR NASTAROD. Le troisième chapitre est dédié aux différentes propriétés structurales des suspensions de nanoparticules de goethite ainsi qu'à leurs propriétés électro-optiques, les mécanismes de réorientation et certains phénomènes électrocinétiques pouvant apparaître sous l'effet d'un champ électrique. Les tests de ces matériaux dans des configurations de filtre optique a permis de mettre en évidence certaines problématiques :

- La transparence optique des suspensions nécessaire à une bonne finesse spectrale donc à une bonne sélectivité du filtre.
- La pression de vapeur saturante très élevée pour certain solvant qui donne lieu à des difficultés technologiques rédhibitoires
- La conductivité ionique des solvants qui peut entraîner un échauffement par effet joule, ce qui provoque des dérives thermiques. Dans le cas des filtres optiques, ce phénomène est extrêmement sensible car le décalage d'un nanomètre en longueur d'onde correspond à une

dilatation du même ordre de grandeur pour l'épaisseur du filtre soit en relatif une dilatation de l'ordre de 0,01% !!

Les résultats obtenus au cours de cette thèse sont néanmoins encourageants malgré toutes les difficultés rencontrées. Cela nous a poussé à faire évoluer le matériau en changeant plusieurs fois de solvant. Cela nous a permis également d'optimiser les aspects technologiques des composants. L'éthylène Glycol a donné des résultats très intéressants, même si la dérive thermique perdure : Cela constitue néanmoins une réelle amélioration par rapport aux suspensions aqueuses, Le dernier solvant utilisé et testé est le DMSO, qui est à première vue, était un excellent candidat de par sa conductivité et sa pression de vapeurs saturantes très basses. Cependant sa réactivité vis-à-vis de la suspension, des couches isolantes et du joint de colle en polymère le rend difficilement utilisable.

Les résultats obtenus jusqu'ici, ont fait l'objet de trois communications à des conférences nationales et internationales.

En ce moment même, nos partenaires ont pu stabiliser les nanoparticules de goethite dans du NMP (*N*-Methyl-2-pyrrolidone) pur. Les premiers résultats concernant à la fois le comportement électro-optique et la réactivité vis-à-vis des couches de protection sont extrêmement prometteurs. L'utilisation de ces matériaux dans le secteur des télécoms ou de l'instrumentation est conditionnée à la réduction des dérives thermique dues à l'effet joule. D'autres applications sont envisageables telles que des déphaseurs ou des interféromètres de type Mach-Zehnder. D'autres architectures de composants sont possibles : Par exemple pour la neutralisation de l'effet électrostatique ; cela consisterait à utiliser une cavité Fabry-pérot fibrée avec un alignement en vis-à-vis de deux fibres optiques avec électrode La suspension est ensuite infiltrée entre les deux fibres. Cette technologie est actuellement en développement à Telecom Bretagne :



Annexe : Principe d'interférence d'ondes multiples

Cette annexe permet d'expliquer le principe d'interférence d'ondes multiples. Ce principe se base sur la superposition d'un grand nombre d'ondes cohérentes. Lorsqu'on éclaire une lame mince d'épaisseur uniforme e et d'indice n , avec une source large, cela donne des franges d'égale inclinaison à l'infini ou dans le plan focal d'une lentille (voir la figure 1). Si les facteurs de réflexion des deux surfaces de cette lame sont proche de l'unité alors toutes les ondes transmises ont quasiment la même amplitude. Afin de déterminer la figure d'interférences, il faut donc prendre en compte toutes les ondes transmises.

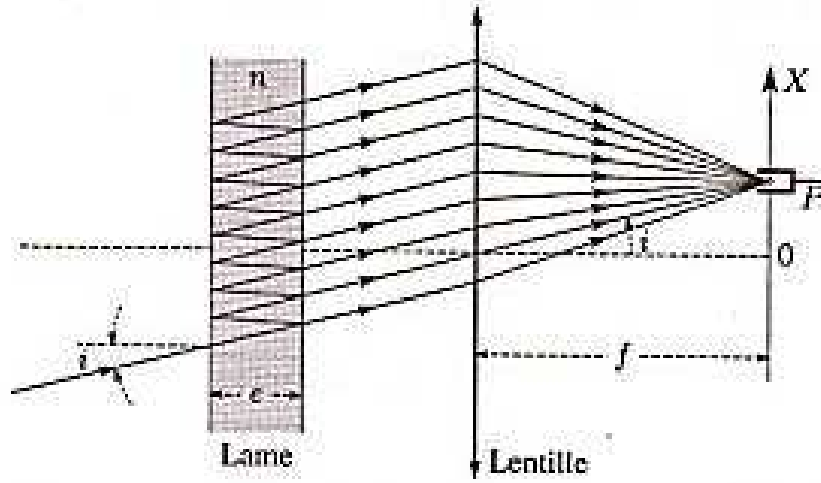


Figure 1. Principe d'interférences multiples avec une lame mince.

Soit Ψ_0 l'amplitude complexe de l'onde incidente avec ρ_1 et ρ_2 les facteurs de réflexion en amplitude pour chaque dioptré et dont les facteurs de transmission correspondants sont notés : τ_1 et τ_2 . Les amplitudes complexes des ondes transmises sont données par la relation suivante :

$$\Psi_n = \Psi_0 \tau_1 \tau_2 \rho_2^{2(n-1)} \exp[i(n-1)\phi] \quad (\text{A.1})$$

Avec $\phi = \frac{2\pi}{\lambda_0} (2ne) \cos(r)$ qui désigne la différence de phase entre deux ondes successives, r est l'angle de réfraction.

Le bilan d'énergie électromagnétique par unité de temps à travers chaque dioptré, est donné par les relations suivantes:

$$\rho_1^2 + n\tau_1^2 = 1 \text{ et } \rho_2^2 + \frac{\tau_2^2}{n} = 1 \quad (\text{A.2})$$

Avec :

$$\rho_2 = -\rho_1 = \frac{n-1}{n+1} , \tau_1 = \frac{2}{n+1} , \tau_2 = \frac{2n}{n+1} \quad (\text{A.3})$$

À partir des relations ci-dessus, on peut facilement déduire que :

$$\rho_1^2 + \tau_1\tau_2 = 1 \text{ Ce qui s'écrit } R + T = 1 \quad (\text{A.4})$$

Avec $R = \rho_1^2$ et $T = \tau_1\tau_2$.

Notons que dans le cas général, de plus des facteurs de réflexion et de transmission, il existe un troisième facteur qui est lié à l'absorption et noté A tel que $R + T + A = 1$.

En introduisant les notations R et T, la relation (A.1) devient :

$$\Psi_n = \Psi_0 T R^{2(n-1)} \exp[i(n-1)\phi] \quad (\text{A.5})$$

Après avoir défini les différentes amplitudes complexes des ondes transmises, nous allons définir l'amplitude complexe de l'onde transmise au plan focal P (comme illustré par la figure 1) qui est la somme des différentes amplitudes décrites par la relation (A.5) :

$$\Psi_t(p) = \sum \Psi_n = \Psi_0 T \sum \{R^{2(n-1)} \exp[i(n-1)\phi]\} \quad (\text{A.6})$$

La somme décrite dans (A.6) est une somme d'une progression géométrique dont la raison est $R \exp(i\phi)$ avec $R < 1$ ce qui donnera :

$$\Psi_t(p) = \Psi_0 T \frac{1}{1 - R \exp(i\phi)} \quad (\text{A.7})$$

L'intensité de l'onde résultante peut se calculer facilement grâce à la relation (A.7) :

$$I_t(P) = |\Psi_t(p)|^2 = |\Psi_0|^2 T^2 \frac{1}{|1 - R \exp(i\phi)|^2} \quad (\text{A.8})$$

En posant $I_0 = |\Psi_0|^2$ et en développant l'exponentiel sous sa forme trigonométrique, on obtient :

$$I_t(P) = I_0 \frac{T^2}{1 + R^2 - 2R \cos \phi} \quad (\text{A.9})$$

Et en introduisant une transformation trigonométrique ($\cos\phi = 1 - \sin^2(\phi/2)$), (A.9) peut s'écrire sous la forme suivante :

$$I_t(P) = I_0 \frac{T^2}{(1-R)^2} \frac{1}{1+M\sin^2(\phi/2)} \quad (\text{A.10})$$

Avec $M = \frac{4R}{(1-R)^2}$

Dans le cas où $\phi = m2\pi$ avec m entier, l'intensité transmise au point P sera égale à :

$$I_{max} = I_0 \left(\frac{T}{1-R} \right)^2 \quad (\text{A.11})$$

Dans le cas où $A=0$, $I_{max} = I_0$; cependant si $A \neq 0$ alors $I_{max} \leq I_0$. En remplaçant (A.11) dans (A.10), on obtient finalement :

$$I_t(P) = \frac{I_{max}}{1+M\sin^2(\phi/2)} \quad (\text{A.12})$$

La fonction :

$$A(\phi) = \frac{1}{1+M\sin^2(\phi/2)} \quad (\text{A.13})$$

La fonction décrite par la relation (A.13) est appelée *fonction d'Airy*, qui est une fonction paire et symétrique, qui se compose de pics successifs dont le profil est lorentzien comme illustré par la figure 2.

La largeur totale des pics à mi-hauteur (L.T.M.H) notée $\Delta\phi_{1/2}$ se déduit aisément:

$$A(\phi) = 0.5 \text{ pour } \phi = \frac{\Delta\phi_{1/2}}{2} = \frac{2}{M^{1/2}} \text{ ce qui donne que } \Delta\phi_{1/2} = \frac{2(1-R)}{R^{1/2}} \quad (\text{A.14})$$

Comme on peut le constater, cette largeur diminue avec l'augmentation de R.

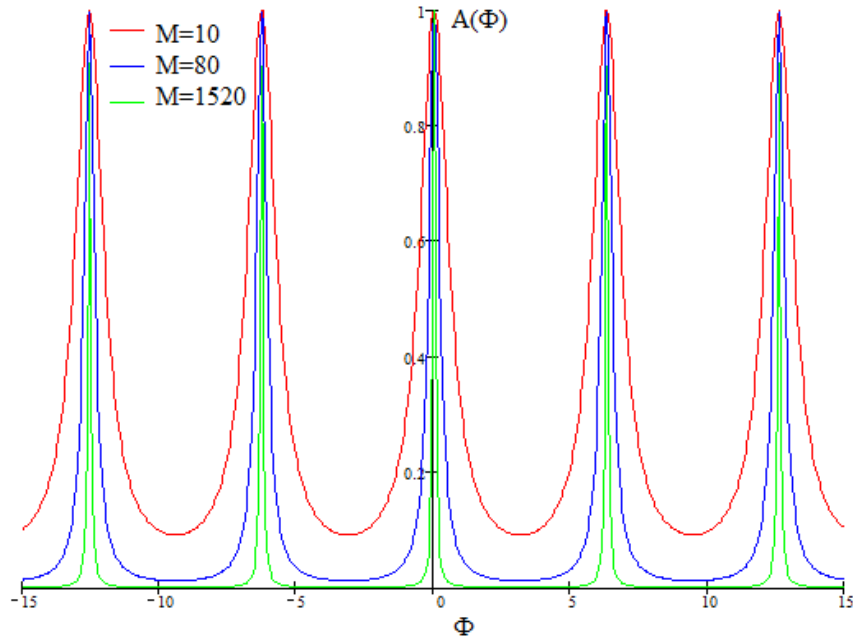


Figure 2. Simulation de la fonction d’Airy à partir de la relation (A.13) pour trois valeurs de M : 10, 80 et 1520.

Dans le cas des filtres interférentiels, comme le filtre Fabry-Pérot, on travaille généralement en incidence normale. Les radiations ainsi transmises doivent satisfaire la condition d’interférence constructive des ondes multiples suivante :

$$\phi = \frac{2\pi}{\lambda} 2ne = 2m\pi \quad (\text{A.15})$$

Sachant que m est un entier. A partir de la relation ci-dessus on peut déterminer les différentes longueurs transmises en sortie du filtre :

$$\lambda_m = 2ne/m \quad (\text{A.16})$$

Un autre paramètre très important est l’*intervalle spectral libre* « ISL », qui est l’intervalle séparant deux pics successifs qui est donné par la relation suivante :

$$ISL = \lambda^2/2ne \quad (\text{A.17})$$

Afin de mieux séparer deux pics successifs, il serait intéressant qu’ils soient le plus fin que possible. Ceci peut se faire en réduisant la largeur à mi-hauteur $\Delta\lambda_{1/2}$ par rapport à l’ISL. Ce rapport est appelé *Finesse* notée F . Autrement dit, un filtre de bonne qualité présente une finesse élevée.

$$F = \frac{ISL}{\Delta\lambda_{1/2}} = \frac{\pi R^2}{1-R} \quad (\text{A.18})$$

Résumé

Le multiplexage par longueur d'onde ou WDM (Wavelength division multiplexing) est devenu une technologie incontournable dans les réseaux cœur et métro afin de répondre à l'augmentation du débit, au nombre de clients et la diversité des services offerts. Cette technologie nécessite des sources accordables mais aussi des filtres sélectifs et reconfigurables pour la gestion des différents canaux avec une basse consommation énergétique, une rapidité de quelques dizaines de millisecondes et un coût le plus bas possible. Mes travaux de thèse s'inscrivent dans cette optique, à savoir l'amélioration des filtres existants par la conception et la fabrication d'un coupleur séparateur de polarisation à base de cristaux liquides polymérisables. Cela permettra de s'affranchir de la dépendance à la polarisation dont souffrent les micro – résonateurs en anneaux. Mais également, l'étude des propriétés électro-optiques des suspensions de nanoparticules de goethite sont présentées afin de concevoir et de fabriquer un filtre optique accordable de type Fabry-Pérot.

Mots clés : Guides optiques, Cristaux liquides, filtres optique, Fabry-Perot, suspensions colloïdales

Abstract

The Wavelength division multiplexing (WDM) is a key technology in core and metro networks to answer to the increased of bandwidth, to the number of customers and to the variety of services offered. This technology require tunable sources but also selective and reconfigurable filters for the managing of different channels with a low energy consumption, switching times around tens of milliseconds and the lowest possible cost. My thesis work is in this context, namely the improvement of existing filters by designing and manufacturing a coupler polarization splitter based on polymerizable liquid crystal technology. This will free itself from dependence on the polarization afflicting micro-resonators rings. But also, the study of electro-optical properties of goethite's nanoparticles suspensions is presented to design and manufacture a Fabry-Perot tunable optical filter.

Keywords: Optical waveguides, liquid crystals, optical filters, Fabry-Perot, colloidal suspensions

Résumé

Le multiplexage par longueur d'onde ou WDM (Wavelength division multiplexing) est devenu une technologie incontournable dans les réseaux cœur et métro afin de répondre à l'augmentation du débit, au nombre de clients et la diversité des services offerts. Cette technologie nécessite des sources accordables mais aussi des filtres sélectifs et reconfigurables pour la gestion des différents canaux avec une basse consommation énergétique, une rapidité de quelques dizaines de millisecondes et un coût le plus bas possible. Mes travaux de thèse s'inscrivent dans cette optique, à savoir l'amélioration des filtres existants par la conception et la fabrication d'un coupleur séparateur de polarisation à base de cristaux liquides polymérisables. Cela permettra de s'affranchir de la dépendance à la polarisation dont souffrent les micro - résonateurs en anneaux. Mais également, l'étude des propriétés électro-optiques des suspensions de nanoparticules de goethite sont présentées afin de concevoir et de fabriquer un filtre optique accordable de type Fabry-Pérot.

Mots-clés : Guides optiques, Cristaux liquides, Filtres optique, Fabry-Perot, Suspensions colloïdales

Abstract

The Wavelength division multiplexing (WDM) is a key technology in core and metro networks to answer to the increased of bandwidth, to the number of customers and to the variety of services offered. This technology require tunable sources but also selective and reconfigurable filters for the managing of different channels with a low energy consumption, switching times around tens of milliseconds and the lowest possible cost. My thesis work is in this context, namely the improvement of existing filters by designing and manufacturing a coupler polarization splitter based on polymerizable liquid crystal technology. This will free itself from dependence on the polarization afflicting micro-resonators rings. But also, the study of electro-optical properties of goethite's nanoparticles suspensions is presented to design and manufacture a Fabry-Perot tunable optical filter.

Keywords : Optical waveguides, Liquid crystals, Optical filters, Fabry-Perot, Colloidal suspensions

TELECOM
Bretagne



n° d'ordre : 2015telb0382

Télécom Bretagne

Technopôle Brest-Iroise - CS 83818 - 29238 Brest Cedex 3

Tél : + 33(0) 29 00 11 11 - Fax : + 33(0) 29 00 10 00